

Untersuchung der einflussgebenden Parameter bei
der Compoundierung von cellulosefaserverstärkten
thermoplastischen Kunststoffen mittels eines gleich-
läufigen Doppelschneckenextruders

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
der Ingenieurwissenschaften

vorgelegt von

Dipl.-Ing. (FH) Tobias Koplin
aus Hannover

genehmigt von der Fakultät für Natur- und Materialwissenschaften
der Technischen Universität Clausthal,

Tag der mündlichen Prüfung
27.10.2014

Vorsitzende/Vorsitzender der Promotionskommission:
Prof. Dr.-Ing. Karl-Heinz Spitzer

Hauptberichterstatter: Prof. Dr.-Ing. Gerhard Ziegmann

Mitberichterstatter: Prof. Dr.-Ing. Hans-Josef Endres

Vorwort

Diese Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Biokunststoffe und Bioverbundwerkstoffe (IfBB) der Hochschule Hannover. Die Dissertation erfolgte kooperativ mit dem Institut für Polymerwerkstoffe und Kunststofftechnik (PuK) der Technischen Universität Clausthal.

Zunächst möchte ich Herrn Prof. Dr.-Ing. Hans-Josef Endres für die Überlassung der Aufgabenstellung und die damit verbundene Verantwortung sowie für die vertrauensvolle Zusammenarbeit während meiner Tätigkeit im IfBB danken.

Weiterhin danke ich Herrn Prof. Dr.-Ing. Gerhard Ziegmann für die Betreuung als Doktorvater während der Bearbeitung des Projektes und die stete Bereitschaft zur intensiven Diskussion.

Bei den Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des IfBB bedanke ich mich ebenfalls für die gute Zusammenarbeit und die vielen gemeinsamen Stunden im Technikum und im Prüflabor. Besonders bedanken möchte ich mich bei Simon McGowan, Felix Schweer, Andrea Siebert-Raths, Marco Neudecker, Carolin Vogt, Ann-Sophie Kitzler, Andreas Schettler, Maren Heim, Wolfgang Mahler, Florian Bittner, Christoph Habermann, Daniela Jahn, Sebastian Spierling, Barbara Struth und Jessica Rutz. Durch die Hilfsbereitschaft und dem außerordentlichen Einsatz dieser Kolleginnen und Kollegen ist die Durchführung dieser Arbeit erst möglich geworden.

Ebenfalls möchte ich mich bei den Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des PuK für die gute Zusammenarbeit bedanken.

Den Herren Harald Schlosser und Armin Ungerer danke ich für die Hilfe bei der Auswahl der Cellulosefasern und der Firma J. Rettenmaier und Söhne GmbH & Co. KG danke ich für die unentgeltliche Bereitstellung der Cellulosefasern.

Tanja Siebert danke ich für die Durchführung der Gelpermeations-Chromatographie-Messungen.

Herrn Prof. Dr. Andreas Thümmel danke ich für die Einführung in die statistische Versuchsplanung und den Beitrag bei der Diskussion zum Anpassungsgrad von Modellen.

Nicht zuletzt danke ich meiner Familie und meinen Freunden, die mir immer den Rücken gestärkt und mich, wenn nötig, auf andere Gedanken gebracht haben. Ganz besonderer Dank gilt meiner Freundin Katharina, die unglaublich viel Verständnis für die unzähligen durchgearbeiteten Wochenenden aufgebracht hat.

Dankeschön!

Inhaltsverzeichnis

ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS	VII
VERWENDETE ZEICHEN UND SYMBOLE	IX
TABELLENVERZEICHNIS	XII
ABBILDUNGSVERZEICHNIS	XV
KURZZUSAMMENFASSUNG	XXI
ABSTRACT.....	XXII
1 EINLEITUNG.....	1
1.1 Einführung.....	1
1.2 Problemstellung und Zielsetzung	4
2 KENNTNISSTAND UND GRUNDLAGEN	7
2.1 Thermoplastische Faserverbundwerkstoffe.....	7
2.1.1 Herstellverfahren für thermoplastische Faserverbundwerkstoffe	7
2.1.2 Matrixkunststoffe.....	8
2.1.3 Faserkomponente	10
2.1.3.1 Einteilung der Fasern nach morphologischen Eigenschaften.....	10
2.1.3.2 Verstärkende Wirkung der Faserkomponenten	10
2.2 Extrusionstechnische Compoundierung von naturfaserverstärkten Kunststoffen	13
2.2.1 Naturfasern als Verstärkungskomponente	13
2.2.1.1 Allgemeines zu Naturfasern.....	13
2.2.1.2 Einordnung der Holzfasern.....	14
2.2.1.3 Bereitstellung von Cellulosefasern	15
2.2.1.4 Cellulosefasern: Soft- und Hardwood.....	16
2.2.1.5 Thermische Beanspruchung bei der Verarbeitung.....	19
2.2.1.6 Faser-Matrix-Grenzflächenverhalten	20
2.2.2 Der gleichläufige Doppelschneckenextruder	21
2.2.2.1 Allgemeiner Aufbau	22
2.2.2.2 Aufgaben und Besonderheiten der Schneckenelemente	23
2.2.2.3 Aufschmelzen des Matrixpolymers	25
2.2.2.4 Zuführung der Naturfasern.....	26
2.2.2.5 Dispergierungszone	27

2.3	Rheologische Eigenschaften von Naturfaser-Compounds	28
2.3.1	Rheologie von thermoplastischen Polymeren	28
2.3.2	Beeinflussung der Viskosität durch Naturfasern.....	29
2.4	Spritzgießtechnische Verarbeitung der Naturfaser-Compounds.....	30
2.5	Statistische Versuchsplanung.....	31
2.5.1	Allgemeines zu statistischer Versuchsplanung	32
2.5.2	Statistische Auswertung.....	32
3	MATERIAL UND METHODEN	36
3.1	Verwendete Materialien.....	36
3.1.1	Polypropylen	36
3.1.2	Polylactid.....	37
3.1.3	Verwendete Cellulosefasertypen.....	38
3.1.4	Charakterisierung der Cellulosefasertypen.....	38
3.2	Herstellung der Cellulosefaser-Compounds.....	42
3.3	Herstellung der Normprüfkörper	43
3.4	Materialcharakterisierung	44
3.4.1	Mechanische und thermomechanische Kennwerte	44
3.4.1.1	Zugprüfung (DIN EN ISO 527-2)	44
3.4.1.2	Biegeprüfung (DIN EN ISO 178)	44
3.4.1.3	Charpy-Schlagzähigkeit (DIN EN ISO 179/1eU).....	44
3.4.1.4	Wärmeformbeständigkeit (ISO 75-A)	44
3.4.2	Rheologische Kennwerte	44
3.4.2.1	Melt Flow Rate bzw. Melt Volume Rate (DIN EN ISO 1133B).....	45
3.4.2.2	Viskositätskurven (DIN 54811-A).....	45
3.4.3	Sonstige Materialcharakterisierung.....	46
3.4.3.1	Messung der Farbwerte (DIN 5033)	46
3.4.3.2	Bestimmung der Faser-Agglomerate.....	46
3.4.3.3	Gelpermeations-Chromatographie-Messungen.....	47
4	METHODISCHE VORGEHENSWEISE	48
4.1	Allgemeines zu der methodischen Vorgehensweise	48
4.1.1	Methodik der Vorgehensweise	48
4.1.2	Versuchsreihen übergreifendes Vorgehen	50
4.2	Identifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter	51
4.2.1	Allgemeines zu den Versuchen	51
4.2.2	Einfluss der Schneckengeometrie	53
4.2.3	Untersuchte Schneckengeometrien	54
4.2.3.1	Schneckengeometrien für PP-Matrix	54
4.2.3.2	Schneckengeometrien für PLA-Matrix.....	55
4.3	Quantifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter.....	57

4.3.1	Quantifizierungsversuche für PP	57
4.3.2	Quantifizierungsversuche für PLA	57
4.4	Charakterisierung der Einflüsse der Fasermorphologie	60
4.5	Einflüsse von Dispergierungszonen und Drehzahl	62
5	ERGEBNISSE UND DISKUSSION	64
5.1	Identifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter	64
5.1.1	PP-Cellulosefaser-Compounds	64
5.1.1.1	Einflüsse auf verfahrenstechnische Zielgrößen	64
5.1.1.2	Einflüsse auf materialtechnische Zielgrößen	68
5.1.2	PLA-Cellulosefaser-Compounds	72
5.1.2.1	Einflüsse auf verfahrenstechnische Zielgrößen	72
5.1.2.2	Einflüsse auf materialtechnische Zielgrößen	75
5.1.3	Diskussion der Ergebnisse zur Identifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter	78
5.1.3.1	Diskussion zu den verfahrenstechnischen Zielgrößen	78
5.1.3.2	Diskussion zu den materialtechnischen Zielgrößen	80
5.2	Quantifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter	82
5.2.1	Box-Behnken-Versuchsplan (PP-Cellulosefaser-Compounds)	82
5.2.2	Wirkungsflächen-Versuchsplan (PLA-Cellulosefaser-Compounds)	86
5.2.3	Variation von PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit	88
5.2.4	Diskussion der Ergebnisse zur Quantifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter	92
5.2.4.1	Box-Behnken-Versuchsplan (PP-CF-Compounds)	92
5.2.4.2	Wirkungsflächen-Versuchsplan (PLA-CF-Compounds)	92
5.2.4.3	Variation von PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit	93
5.3	Charakterisierung der Einflüsse der Fasermorphologie	94
5.3.1	PP-Cellulosefaser-Compounds	94
5.3.2	PLA-Cellulosefaser-Compounds	97
5.3.3	Diskussion der Ergebnisse zu den Einflüssen der Fasermorphologie	99
5.4	Einfluss von Dispergierungszonen und Drehzahl	102
5.4.1	PP-Cellulosefaser-Compounds	102
5.4.2	PLA-Cellulosefaser-Compounds	105
5.4.3	Diskussion der Ergebnisse zu Dispergierungszonen und Drehzahl	107
6	EINFÜHRUNG, ANPASSUNG UND DISKUSSION VERSCHIEDENER MODELLE ZUR VORHERSAGE DER COMPOUNDEIGENSCHAFTEN	109
6.1	Modell zur Berechnung der Compound-Viskositäten	109
6.1.1	Einführung eines Modells zur Berechnung der Compound-Viskositäten	109
6.1.2	Verifizierung und Anpassung des Viskositäts-Modells	110
6.2	Modelle zur Berechnung der E-Moduln	113
6.2.1	Einführung verschiedener Modelle zur Berechnung der E-Moduln	113

6.2.1.1	Modell von Cox-Krenchel	113
6.2.1.2	Modell von Cox-Krenchel (modifiziert).....	114
6.2.1.3	Modell von Tsai-Pagano	115
6.2.1.4	Modell von Halpin-Tsai.....	116
6.2.2	Gegenüberstellung der Modelle	116
6.2.3	Anpassung der Modelle zur Berechnung der E-Modul-Werte.....	118
6.2.3.1	Anpassung des Modells von Cox-Krenchel.....	118
6.2.3.2	Anpassung des erweiterten Modells von Cox-Krenchel.....	119
6.2.3.3	Anpassung des Modells von Tsai-Pagano.....	119
6.2.3.4	Anpassung des Modells von Halpin-Tsai	120
6.2.4	Gegenüberstellung der angepassten Modelle zur Berechnung der E-Moduln.....	120
6.3	Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeiten	123
6.3.1	Einführung verschiedener Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeit	123
6.3.1.1	Modell von Kelly-Tyson	123
6.3.1.2	Modell von Kelly-Tyson (modifiziert)	124
6.3.1.3	Modell von Turcsányi	125
6.3.2	Gegenüberstellung der Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeiten.....	125
6.3.3	Anpassung der Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeiten	128
6.3.3.1	Anpassung des Modells von Kelly-Tyson.....	128
6.3.3.2	Anpassung des erweiterten Modells von Kelly-Tyson.....	129
6.3.3.3	Anpassung des Modells von Turcsányi.....	129
6.3.4	Gegenüberstellung der angepassten Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeiten.....	130
6.4	Anwendung der angepassten Modelle auf andere Compounds	132
6.4.1	Anwendung des angepassten Modells für die Berechnung der relativen Viskositäten...135	
6.4.2	Anwendung der angepassten Modelle für die Berechnung der E-Moduln	136
6.4.3	Anwendung der angepassten Modelle für die Berechnung der Zugfestigkeiten	139
6.5	Fazit zur Vorhersage der Compouneigenschaften.....	143
7	SCHLUSSFOLGERUNGEN	145
7.1	Überprüfung der aufgestellten Hypothesen	145
7.2	Weitere wesentliche Erkenntnisse	148
8	ZUSAMMENFASSUNG	150
	LITERATURVERZEICHNIS.....	152
A	ANHANG	164
A.1	Screening-Versuchsplan PP-Cellulosefaser	164
A.2	Screening-Versuchsplan PLA-Cellulosefaser	166
A.3	Box-Behnken-Versuchsplan PP-Cellulosefaser	168

A.4	Wirkungsflächen-Versuchsplan PLA-Cellulosefaser	169
A.5	Versuchsplan Einfluss Materialfeuchte PLA-Cellulosefaser	169
A.6	Versuchsplan Cellulosefasern in PP	170
A.7	Versuchsplan Cellulosefasern in PLA.....	171
A.8	Faserdispergierungsversuche PP-Cellulosefaser	172
A.9	Faserdispergierungsversuche PLA-Cellulosefaser	173
A.10	Liste der Publikationen und Vorträge	174

Abkürzungsverzeichnis

ABS	Acrylnitril-Butadien-Styrol	HDT	Heat Distortion Temperature (Wärmeformbeständigkeit)
AR	Aspect Ratio, Länge-zu-Durchmesser-Verhältnis	HF	Holzfasern
ARE	Atmosphärische Rückwärts-entgasung	HVM	Haftvermittler
ASZ	Aufschmelzzone	HW	Hardwood, Laubholz
atm.	atmosphärisch	IM	Injection Moulding, Spritzgießen
AVK	Industrievereinigung Verstärkte Kunststoffe e.V.	k.A.	keine Angabe
B	Bestimmtheitsmaß	KB	Knetblock
Bi	Birke	L/d-Verhältnis	Länge-zu-Durchmesser-Verhältnis (Aspect Ratio)
Bu	Buche	LDI	L -lysine-diisocyanate
CF	Cellulosefasern	MFR	Melt Flow Rate [g/10min]
CFT	Cellulosefasertypen	ML	Mittellamelle
CM	Compression Moulding, Formpressen	Mod.	Modell
D	Durchmesser, Einheit für Verfahrenslänge (1D = 34 mm)	MPE	Multi-Process-Element
DIN	Deutsches Institut für Normung e.V.	MSA	Maleinsäureanhydrid
Disp.	Dispergierungszone	MSA-g-PLA	Maleinsäureanhydrid-gepfropftes Polylactid
ECF	Elementar-chlorfrei	MSA-g-PP	Maleinsäureanhydrid-gepfropftes Polypropylen
emp.	empirisch	MVR	Melt Volume Rate [cm ³ /10min]
Ex	Extrusion	NFK	Naturfaserverstärkte Kunststoffe
F	Fichte	P	Primärwand
FG	Freiheitsgrad	Pa	Pappel
GPC	Gelpermeations-Chromatographie		

PA	Polyamid
PD	Polydispersität
PE	Polyethylen
PLA	Polylactid
PP	Polypropylen
PS	Polystyrol
rel.	relativ
REM	Rasterelektronenmikroskop
S	Sekundärschicht
SEP	Steam Explosion Pulping
SME	Spezifischer Mechanischer Energieeintrag
SW	Softwood, Nadelholz
TCF	Total-chlorfrei
THF	Tetrahydrofuran
VF	Viskosefasern
vgl.	vergleiche
vol.-%	Volumenprozent
WPC	Wood Plastic Compound
wt.-%	Gewichtsprozent
WW	Wechselwirkung
ZE	Zweischneckenextruder
ZSFE	Zweischnecken- Seitenfüttereinrichtung

Verwendete Zeichen und Symbole

\bar{M}_n	Zahlenmittel des Molekulargewichts	V_f	Faservolumenanteil
\bar{M}_w	Gewichtsmittel des Molekulargewichts	X_i	Faktor für Faserausrichtungsgeometrie
\hat{y}_i	Prognosewerte des Regressionsmodells	a_n	Faser-Fraktion
A_f	Faktor für Faserpackungsverteilung	b_n	Koeffizienten (allgemein)
B_{kor}	Korrigiertes Bestimmtheitsmaß	f_{rot}	Drehzahl [min^{-1}]
D_S	Durchmesser des Prüfstempels [mm]	$k_{KT(PLA)}$	Anpassungsfaktor (Kelly-Tyson) für PLA-Matrix
E_c	E-Modul des Compounds [MPa]	$k_{KT(PP)}$	Anpassungsfaktor (Kelly-Tyson) für PP-Matrix
E_f	E-Modul der Faser [MPa]	$k_{Tu(PLA)}$	Anpassungsfaktor (Turcsányi) für PLA-Matrix
E_m	E-Modul der Matrix [MPa]	$k_{Tu(PP)}$	Anpassungsfaktor (Turcsányi) für PP-Matrix
$FG_{spez.}$	Spezifischer Füllgrad [$\text{kg} \cdot \text{min}/\text{h}$]	k_f	Fasertragfaktor
F_{tan}	Tangentialkraft [N]	k_m	Matrixtragfaktor
G_m	Schubmodul der Matrix [MPa]	$k_{mod.(PLA)}$	Anpassungsfaktor (erw. Kelly-Tyson) für PLA-Matrix
L_D	Länge der Düse [mm]	$k_{mod.(PP)}$	Anpassungsfaktor (erw. Kelly-Tyson) für PP-Matrix
L_{kr}	kritische Faserlänge [μm]	k_p	Pullout-Wahrscheinlichkeitsfaktor
$M_{PLA,th.}$	Theoretische molare Masse des PLA	$k_{rV(PLA)}$	Anpassungsfaktor für relative Viskosität für PLA-Matrix
M_{PLA}	Molare Masse des PLA [g/mol]	$k_{rV(PP)}$	Anpassungsfaktor für relative Viskosität für PP-Matrix
M_i	Molekulargewicht der einzelnen Fraktionen [g/mol]	k_{rV}	Anpassungsfaktor für relative Viskosität
P_c	Compound-Eigenschaft	\dot{m}	Durchsatz [kg/min]
P_f	Faser-Eigenschaft	m_i	Produkt aus Molekülanzahl und Molekulargewicht
P_m	Matrix-Eigenschaft		
$Q_{rel.}$	Aspect Ratio-Verteilung		
R_D	Radius der Düse [mm]		
\dot{V}	Volumendurchsatz [mm^3/s]		

n_M	Anzahl der durchgeführten Messungen	η_L	Faserlängen-Effizienzfaktor
$n_{Spalt.}$	Anzahl der Kettenspaltungen	η_a	Agglomerationsfaktor
n_i	Anzahl der Moleküle in der jeweiligen Fraktion	η_c	Compound-Viskosität [Pa*s]
p_{max}	Maximaler Druck [bar]	η_{kr}	Faktor zur Einbeziehung der kritischen Faserlänge
p_{min}	Minimaler Druck [bar]	η_{lo}	Faktor für longitudinale Ausrichtung
p_n	Anzahl der angepassten Parameter	η_m	Matrix-Viskosität [Pa*s]
p_{rel}	Druckverhältnis	$\eta_{rel.}$	relative Viskosität
x_n	Faktoren	$\eta_{rel.M(PLA)*}$	Angepasstes Modell für relative Viskosität für PLA-Matrix
\bar{y}	Arithmetisches Mittel der Messwerte	$\eta_{rel.M(PP)*}$	Angepasstes Modell für relative Viskosität für PP-Matrix
y_i	Zielgrößen	$\eta_{rel.M}$	Relative Viskosität, Modellrechnung
y_i	Tatsächlich gemessene Werte	η_{tr}	Faktor für transversale Ausrichtung
α_{kr}	kritischer Aspect Ratio der Faser	$\xi_{(PLA)}$	Anpassungsfaktor (Halpin-Tsai) für PLA-Matrix
$\dot{\gamma}$	Schergeschwindigkeit [s ⁻¹]	$\xi_{(PP)}$	Anpassungsfaktor (Halpin-Tsai) für PP-Matrix
ε_i	zufälliger Fehler	ρ_{cell}	Dichte der Cellulosefasern [g/cm ³]
η_h	Faktor für E-Modul-Verhältnis von Faser und Matrix	ρ_m	Dichte der Matrix [g/cm ³]
η_A	Anbindungsfaktor (Tsai-Pagano)	σ_c	Zugfestigkeit des Compounds [MPa]
$\eta_{CK(PLA)}$	Anpassungsfaktor (Cox-Krenchel) für PLA-Matrix	σ_{c*}	Angepasstes Modell zur Berechnung der Zugfestigkeit des Compounds
$\eta_{CK(PP)}$	Anpassungsfaktor (Cox-Krenchel) für PP-Matrix	σ_f	Zugfestigkeit der Faser [MPa]
η_{CK}	Anpassungsfaktor (Cox-Krenchel)	σ_p	Grenzflächenscherfestigkeit
$\eta_{E(PLA)}$	Anpassungsfaktor für Mischbedingungen (erw. Cox-Krenchel) für PLA-Matrix	σ_{um}	Zugspannung der Matrix bei Bruchdehnung der Faser [MPa]
$\eta_{E(PP)}$	Anpassungsfaktor für Mischbedingungen (erw. Cox-Krenchel) für PP-Matrix	τ_m	Schubfestigkeit der Matrix bzw. der Faser-Matrix-Grenzfläche [MPa]
η_E	Anpassungsfaktor für Mischbedingungen (erw. Cox-Krenchel)		

ψ_f	Gewichtsanteil der Fasern	ξ	Faktor für Halpin-Tsai-Modell
ϕ_n	Ausrichtungswinkel	τ	Schubspannung [Pa]
h	Höhe [mm]	ν	Querkontraktionszahl bzw. Poissonzahl
Δp	Druckdifferenz [Pa]	ψ	Faservolumenfaktor
A	Fläche	E_{22}	E-Modul in Querrichtung zur Belastung [MPa]
B	Bestimmtheitsmaß	E_{11}	E-Modul in Längsrichtung zur Belastung [MPa]
B_f	Faktor für Faser-Matrix-Grenzfläche	Q_3	oberes Quartil
FG	Freiheitsgrade	d_1, d_2	Unterschiedliche Faserdurchmesser zur Einbeziehung der ovalen Form der Fasern ($d_1 > d_2$)
L	Mittlere Faserlänge [μm]	M_{H_2O}	Molare Masse von Wasser [g/mol]
M	Drehmoment [Nm]	ψ_{f,H_2O}	Gewichtsanteil des Wassers in den Fasern
PD	Polydispersität	ψ_{m,H_2O}	Gewichtsanteil des Wassers in der Matrix (PLA)
R	Distanz zwischen Einzelfasern im Compound [μm]	Q_1	unteres Quartil
c	Kehrwert des Faserpackungsfaktors	$M_{PLA,0}$	Ursprüngliche molare Masse des PLA [g/mol]
d	mittlerer Faserdurchmesser [μm]	b_0	Konstanten (allgemein)
e	Eulersche Zahl (2,71828...)	η_0	Faserorientierungsfaktor
g	Erdbeschleunigung (9,81 m/s ²)		
k	Faser-Effizienz-Faktor		
m	Masse [kg]		
n	Faktor für Mischbedingungen bei der Compoundierung		
p	Faserpackungsfaktor, max. Faservolumenanteil		
r	Dehnungsverhältnis von Matrix zu Faser		
t	Zeit [s]		
u	Auslenkung [mm]		
β	Faktor zur Berechnung von η_L		
η	Scherviskosität [Pa*s]		

Tabellenverzeichnis

Tabelle 2-1: Anteile der Holzbestandteile in Soft- und Hardwood [75]	17
Tabelle 2-2: Eigenschaften von Soft- und Hardwoodfasern im Vergleich (F=Fichte, Bi= Birke, Bu= Buche, Pa= Pappel, A= allgemeine Werte für Soft- bzw. Hardwood).....	18
Tabelle 2-3: Eigenschaften von aufgeschlossenen Soft- und Hardwoodfasern im Vergleich (F=Fichte, Bi= Birke, Bu= Buche)	18
Tabelle 3-1: Eigenschaften des verwendeten PP-Typs BH345MO, in Klammern ist die Standardabweichung angegeben	36
Tabelle 3-2: Eigenschaften des verwendeten PLA-Typs 3251D, in Klammern ist die Standardabweichung angegeben	37
Tabelle 3-3: Übersicht der verwendeten Cellulosefasertypen	38
Tabelle 3-4: Spritzgießparameter bei der Herstellung der Normprüfkörper 1A	43
Tabelle 4-1: Minus- und Plus-Stufen der Screening-Versuche für PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds	52
Tabelle 4-2: Relative Einordnung der Schneckenelemente nach Scher-, Misch- und Stauwirkung (Vergleich nach [121] und [125]).....	53
Tabelle 4-3: Relative Gegenüberstellung der Scher-, Misch- und Stauwirkung der verwendeten Schneckenkonfigurationen für die PP-Screening-Versuche, in Klammern sind die Werte für die Aufschmelzzonen dargestellt	55
Tabelle 4-4: Relative Gegenüberstellung der Scher-, Misch- und Stauwirkung der verwendeten Schneckenkonfigurationen für die PLA-Screening-Versuche, in Klammern sind die Werte für die Aufschmelzzonen dargestellt	56
Tabelle 4-5: Faktorstufen für den PLA-Wirkungsflächen-Versuchsplan.....	58
Tabelle 4-6: Faktorstufen für die Variation der PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeiten	58

Tabelle 4-7: Literaturangaben zur Vortrocknung von Naturfasern und PLA vor der Verarbeitung (k.A.= keine Angabe)	59
Tabelle 4-8: Anzahl der möglichen Kettenspaltungen und die daraus theoretisch resultierende molare Masse des PLA.....	60
Tabelle 4-9: Übersicht der untersuchten Einflussgrößen der verschiedenen Cellulosefasertypen (SW= Softwood, HW= Hardwood)	61
Tabelle 4-10: Versuchsparameter für die Faserdispergierung	62
Tabelle 5-1: Haupteffekte der Faktoren auf verfahrenstechnische Zielgrößen für PP-CF-Compounds (Datenmittelwerte), in Klammern ist die jeweilige prozentuale Abweichung vom Mittelwert angegeben	66
Tabelle 5-2: Übersicht der maximalen Einflüsse der Faktoren auf die materialtechnischen Zielgrößen für PP-CF-Compounds (angegeben sind jeweils die Werte für den stärksten Einflussfaktor, A= Schneckenkonfiguration, B= Faserfeuchtigkeit, C= Spezifischer Füllgrad, D= Schneckendrehzahl)	70
Tabelle 5-3: Haupteffekte der Faktoren auf verfahrenstechnische Zielgrößen für PLA-CF-Compounds (Datenmittelwerte), in Klammern ist die jeweilige prozentuale Abweichung vom Mittelwert angegeben	73
Tabelle 5-4: Übersicht der maximalen Einflüsse der Faktoren auf die materialtechnischen Zielgrößen für PLA-CF-Compounds (angegeben sind jeweils die Werte für den stärksten Einflussfaktor, A= Schneckenkonfiguration, B= Faserfeuchtigkeit, C= Spezifischer Füllgrad, D= Schneckendrehzahl)	76
Tabelle 5-5: Koeffizienten zur Modellerstellung für die verfahrenstechnischen Zielgrößen (PP-CF-Compounds).....	83
Tabelle 5-6: Koeffizienten zur Modellerstellung für die materialtechnischen Zielgrößen (PP-CF-Compounds).....	84
Tabelle 5-7: Koeffizienten zur Modellerstellung für die verfahrenstechnischen Zielgrößen (PLA-CF-Compounds).....	86
Tabelle 5-8: Koeffizienten zur Modellerstellung für die materialtechnischen Zielgrößen (PLA-CF-Compounds).....	87

Tabelle 5-9: Effekte von PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit auf verfahrenstechnische Zielgrößen (Datenmittelwerte), in Klammern ist die jeweilige prozentuale Abweichung vom Mittelwert angegeben.....	89
Tabelle 6-1: Mittlere Abweichung [MPa] der verschiedenen Modelle im Vergleich zu den ermittelten E-Modul-Kennwerten der PP-CF-Compounds	121
Tabelle 6-2: Mittlere Abweichung [MPa] der verschiedenen Modelle im Vergleich zu den ermittelten E-Modul-Kennwerten der PLA-CF-Compounds	123
Tabelle 6-3: Mittlere Abweichung [MPa] der verschiedenen Modelle im Vergleich zu den ermittelten Zugfestigkeits-Kennwerten der PP-CF-Compounds	131
Tabelle 6-4: Mittlere Abweichung [MPa] der verschiedenen Modelle im Vergleich zu den ermittelten Zugfestigkeits-Kennwerten der PLA-CF- Compounds	132
Tabelle 6-5: Zusammensetzung der Compounds für den Modell-Vergleich (PP- Matrix).....	133
Tabelle 6-6: Mechanische und rheologische Eigenschaften der verwendeten PP- Matrices	134
Tabelle 6-7: Zusammensetzung der Compounds für den Modell-Vergleich (PLA- Matrix).....	134
Tabelle 6-8: Mittlere Abweichung der berechneten E-Modul-Werte für die PP- und PLA-Compounds innerhalb und außerhalb der Grenzen der jeweiligen Modelle	139
Tabelle 6-9: Mittlere Abweichung der berechneten Zugfestigkeitswerte für die PP- und PLA-Compounds innerhalb und außerhalb der Grenzen der jeweiligen Modelle	142

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1-1: Produktionskapazitäten von Wood Plastic Compounds (WPC) und Naturfaserverstärkten Kunststoffen (NFK) in Deutschland [143]	2
Abbildung 1-2: Verteilung der Verarbeitungsverfahren für WPC und NFK in Europa [143].....	3
Abbildung 2-1: Strukturformel des PP	9
Abbildung 2-2: Strukturformel des PLA	9
Abbildung 2-3: Schema der Faser-Pullout-Kurve, basierend auf dem Pullout-Test (vgl. [97], S. 247)	12
Abbildung 2-4: Einteilung der Naturfasern nach GESSNER [49].....	13
Abbildung 2-5: Einordnung der Holzfasern innerhalb der pflanzlichen Naturfasern (vgl. [18], [100]).....	14
Abbildung 2-6: Aufbau einer Holzfaser und Struktur der Cellulose (basierend auf Abbildungen von [21], [75], [140]).....	15
Abbildung 2-7: Verfahrensaufbau für die Herstellung von Naturfaser-Compounds (nach [56] und [126], angepasst).....	22
Abbildung 2-8: Darstellung verschiedener Schneckenelemente; a= Förderelemente, b= Knetblock-Elemente, c= Multi-Process-Elemente, d= Zahnblockelemente, e= Stauscheiben	24
Abbildung 2-9: Zwei-Platten-Modell zur Darstellung des rheologischen Verhaltens	28
Abbildung 2-10: Schematisches Prozessmodell für die Versuchsplanung	32
Abbildung 3-1: Gegenüberstellung der gemessenen Faserlängen [μm] der untersuchten Cellulosefasertypen; der Zahlenwert gibt jeweils die mittlere Faserlänge an; \oplus = Mittelwert; \otimes = Medianwert	39

Abbildung 3-2: Gegenüberstellung der gemessenen Faserdicken [μm] der untersuchten Cellulosefasertypen; der Zahlenwert gibt jeweils die mittlere Faserdicke an; \oplus = Mittelwert; \otimes = Medianwert.....	40
Abbildung 3-3: Gegenüberstellung der berechneten Aspect Ratio-Werte (L/d-Verhältnis) [/] der untersuchten Cellulosefasertypen; der Zahlenwert gibt jeweils den mittleren Aspect Ratio an, der Wert in Klammern gibt den berechneten Mittelwert aus Abb. 3-1 und Abb. 3-2 an; \oplus = Mittelwert; \otimes = Medianwert, Angabe der Q_{rel} -Werte im oberen Bereich	40
Abbildung 3-4: REM-Aufnahmen der Cellulosefasertypen in der Übersicht...	42
Abbildung 3-5: Darstellung der $L^*a^*b^*$ -Werte mit den dazugehörigen Farben	46
Abbildung 4-1: Überblick der durchgeführten Untersuchungen untergliedert in PP + Cellulosefaser (links) und PLA + Cellulosefaser (rechts) ...	48
Abbildung 4-2: Gegenüberstellung der PP-KB-MPE und PP-KB-Schnecken mit Markierung der Aufschmelzzonen, der Dispergierungszonen und der Nachdispergierungen	55
Abbildung 4-3: Gegenüberstellung der PLA-KB-MPE und PLA-KB-Schnecken mit Markierung der Aufschmelzzonen, der Dispergierungszonen und der Nachdispergierungen	56
Abbildung 4-4: Box-Behnken-Versuchsplan zur Variation von Spezifischem Füllgrad, Schneckendrehzahl und Faserfeuchte	57
Abbildung 4-5: Vergleich der verwendeten Dispergierungszonen mit Angabe von Scher-, Misch- und Stauwirkung.....	63
Abbildung 5-1: Standardisierte Effekte auf verfahrenstechnische Zielgrößen der Faktoren und Wechselwirkungen für PP-CF-Compounds..	64
Abbildung 5-2: Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und Schneckendrehzahl auf SME und Schmelzetemperatur für PP-CF-Compounds	67
Abbildung 5-3: Einflüsse der Faktoren A bis F auf Schlagzähigkeit, Viskosität, L^* - und b^* -Wert für PP-CF-Compounds	71
Abbildung 5-4: Standardisierte Effekte auf verfahrenstechnische Zielgrößen der Faktoren und Wechselwirkungen für PLA-CF-Compounds	72

Abbildung 5-5: Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und Schneckendrehzahl auf SME und Schmelzetemperatur für PLA-CF-Compounds	74
Abbildung 5-6: Einflüsse der Faktoren A bis F auf Melt Flow Rate, L*- und b*-Wert für PLA-CF-Compounds	77
Abbildung 5-7: Gesamt-Konturdiagramm für den Einfluss von Schneckendrehzahl und Spezifischen Füllgrad auf die Zielgrößen (PP-CF-Compounds)	85
Abbildung 5-8: Gesamt-Konturdiagramm für den Einfluss von Schneckendrehzahl und Spezifischen Füllgrad auf die Zielgrößen (PLA-CF-Compounds)	88
Abbildung 5-9: Anpassungsgrad der Modelle für die materialtechnischen Zielgrößen bei der Variation von PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit	90
Abbildung 5-10: Einflüsse der PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit auf die Zug- und Biegefestigkeit, L*- und b*-Wert	90
Abbildung 5-11: Gegenüberstellung der Molmassenverteilungen der PLA-Cellulosefaser-Compounds für die Variation der Materialfeuchtigkeiten (Bezeichnung in Klammern meint zuerst die PLA- und dann die Cellulosefaser-Feuchtigkeit)	91
Abbildung 5-12: Übersicht der Ergebnisse der Variation der Cellulosefaser-Morphologie und -Herkunft auf die materialtechnischen Zielgrößen im Vergleich zu reinem PP	94
Abbildung 5-13: Optimale erreichte Werte der untersuchten Zielgrößen im Vergleich zum BC200-Compound als Kompromisslösung und dem ungefüllten PP, in Klammern sind die Fasertypen mit den jeweils besten Kennwerten angegeben.....	96
Abbildung 5-14: Übersicht der Ergebnisse der Variation der Cellulosefaser-Morphologie und -Herkunft auf die materialtechnischen Zielgrößen im Vergleich zu reinem PLA	97
Abbildung 5-15: Optimale erreichte Werte der untersuchten Zielgrößen im Vergleich zum BC200-Compound als Kompromisslösung und dem ungefüllten PLA, in Klammern sind die Fasertypen mit den jeweils besten Kennwerten angegeben.....	98

Abbildung 5-16: REM-Aufnahmen von Bruchflächen von PLA-BC1K-Compounds (a und c) und PP-BC1K-Compounds (b und d), Vergleich von Schmelzeplatten (a und b) und Normprüfstäben (c und d).	100
Abbildung 5-17: Übersicht der Einflüsse der Schneckendrehzahlen und der Faserdispergierungszonen auf die Materialeigenschaften der PP-BC1K-Compounds.....	102
Abbildung 5-18: Einflüsse der Dispergierungszone und der Schneckendrehzahl auf das Druckverhältnis als Maß für die Agglomeration der Cellulosefasern für die PP-Compounds	103
Abbildung 5-19: Einfluss der verschiedenen Dispergierungszonen auf die Farbwerte der Compounds im Vergleich zum PP-BC1K-Compound (Disp. 1; $n=100 \text{ min}^{-1}$).....	104
Abbildung 5-20: Übersicht der Einflüsse der Schneckendrehzahlen und der Faserdispergierungszonen auf die Materialeigenschaften der PLA-BC1K-Compounds.....	105
Abbildung 5-21: Einflüsse der Dispergierungszone und der Schneckendrehzahl auf das Druckverhältnis als Maß für die Agglomeration der Cellulosefasern für die PLA-Compounds	106
Abbildung 5-22: Einfluss der verschiedenen Dispergierungszonen auf die Farbwerte der Compounds im Vergleich zum PLA-BC1K-Compound (Disp. 1; $n=88 \text{ min}^{-1}$).....	107
Abbildung 6-1: Vergleich der Modellwerte für die relative Viskosität der PP- und PLA-CF-Compounds mit den tatsächlich gemessenen Werten	110
Abbildung 6-2: Relative Viskosität der PP-CF-Compounds; Vergleich der Messwerte mit den berechneten Werten nach Brodnyan und dem angepassten Modell (*).....	111
Abbildung 6-3: Relative Viskosität der PLA-CF-Compounds; Vergleich der Messwerte mit den berechneten Werten nach Brodnyan und dem angepassten Modell (*).....	112
Abbildung 6-4: Vergleich der tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte der PP-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Modellwerten	117
Abbildung 6-5: Vergleich der tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte der PLA-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Modellwerten	118

Abbildung 6-6: Vergleich der tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte der PP-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Werten der angepassten Modelle (Kennzeichnung mit *)	121
Abbildung 6-7: Vergleich der tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte der PLA-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Werten der angepassten Modelle (Kennzeichnung mit *)	122
Abbildung 6-8: Vergleich der tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der PP-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Modellwerten	126
Abbildung 6-9: Vergleich der tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der PLA-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Modellwerten	127
Abbildung 6-10: Vergleich der tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der PP-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Werten der angepassten Modelle (Kennzeichnung mit *)	130
Abbildung 6-11: Vergleich der tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der PLA-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Werten der angepassten Modelle (Kennzeichnung mit *)	131
Abbildung 6-12: Vergleich der gemessenen relativen Viskositäten der PP-Faser-Compounds mit den berechneten Werten nach dem angepassten Brodnyan-Modell	135
Abbildung 6-13: Vergleich der gemessenen relativen Viskositäten der PLA-Faser-Compounds mit den berechneten Werten nach dem angepassten Brodnyan-Modell	136
Abbildung 6-14: Vergleich der berechneten und gemessenen E-Modul-Werte für die PP-Faser-Compounds (gestrichelte Linie markiert die Compounds außerhalb der Modellgrenzen)	137
Abbildung 6-15: Vergleich der berechneten und gemessenen E-Modul-Werte für die PLA-Faser-Compounds (gestrichelte Linie markiert die Compounds außerhalb der Modellgrenzen)	138
Abbildung 6-16: Vergleich der berechneten und gemessenen Zugfestigkeitswerte für die PP-Faser-Compounds (gestrichelte Linie markiert die Compounds außerhalb der Modellgrenzen)	140
Abbildung 6-17: Vergleich der berechneten und gemessenen Zugfestigkeitswerte für die PLA-Faser-Compounds (gestrichelte Linie markiert die Compounds außerhalb der Modellgrenzen)	141

Abbildung 7-1: Vergleich der optimalen Kennwerte von PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds	146
---	-----

Kurzzusammenfassung

Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung der einflussgebenden Parameter bei der extrusionstechnischen Herstellung von Cellulosefaserverstärkten thermoplastischen Compounds. Die Verarbeitung erfolgt mithilfe eines gleichsinnig drehenden Doppelschneckenextruders. Als Matrixkunststoffe dienen Polypropylen (PP) und Polylactid (PLA). Die hergestellten Compounds sollen im spritzgießtechnischen Bereich verwendet werden.

Zunächst erfolgt die Untersuchung der verfahrenstechnischen Faktoren und hierbei die Trennung der einflussgebenden von den irrelevanten Faktoren. Anschließend werden die beeinflussten Faktoren hinsichtlich der Auswirkungen auf die Zielgrößen untersucht. Der Einfluss verschiedener Fasermorphologischer Eigenschaften wird ermittelt. Weiterhin wird der Einfluss verschiedener Faserdispergierungszonen auf die Agglomeration der Cellulosefasern im Compound untersucht.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Schneckendrehzahl, der Spezifische Füllgrad sowie die Wechselwirkung der beiden Faktoren die einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter sind. Diese beeinflussen maßgeblich die Schmelztemperatur, den Druck vor der Düse, den Spezifischen Mechanischen Energieeintrag sowie die Farbgebung und die Viskosität der PP-Cellulosefaser-Compounds. Bei höherer Cellulosefaser-Feuchtigkeit findet eine geringere thermische Schädigung der Cellulosefasern statt. Bei den PLA-Compounds führt eine höhere Feuchtigkeit jedoch zu einer abnehmenden Biegefestigkeit. Die weiteren mechanischen Kennwerte werden nicht beeinträchtigt und ein Molmassen-Abbau findet nicht statt. Aus diesen Gründen kann auf eine Vortrocknung der Cellulosefasern auch bei PLA, bei ausreichender Entgasung während der Verarbeitung, verzichtet werden.

Cellulosefasern mit einer hohen mittleren Länge und einem hohen mittleren L/d-Verhältnis verbessern die mechanischen Eigenschaften der Compounds. Bei einer mittleren Länge von über 100 µm und einem mittleren L/d-Verhältnis >5 ist jedoch eine erhöhte Agglomerationsneigung der Cellulosefasern festzustellen, gleichzeitig steigt die Viskosität der Compounds stark an. Die Herkunft und die Verteilung des L/d-Verhältnisses der Cellulosefasern haben keinen Einfluss auf die Eigenschaften der hergestellten Compounds.

Der Vergleich der Matrices zeigt, dass die PP-Compounds über eine deutlich bessere Anbindung zwischen Faser und Matrix verfügen. In die PLA-Matrix kann ein höherer Faservolumenanteil bei gleichzeitig höheren Durchsätzen eingearbeitet werden.

Die Berechnung der Eigenschaften der PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds ist mithilfe von teilweise angepassten Modellen möglich. Diese Modelle können auch auf andere PP- und PLA-Fasercompounds übertragen werden.

Abstract

The objective of this work is to examine the influential parameters for the production of cellulose fibre reinforced thermoplastic compounds made by extrusion technology. The processing is made by a co-rotating twin screw extruder. Polypropylene (PP) and Polylactide acid (PLA) are the matrix polymers. The manufactured compounds should be used for injection moulding applications.

Processing factors are the main target of examinations at first, here the separation of the influencing and irrelevant factors take place. Following this, the influenced factors are examined regarding to their impact on the target values. The influence of different fibre-morphological properties is analysed. Furthermore, the influence of several fibre dispersion zones on the agglomeration of the cellulose fibres is investigated.

The results show that screw speed, specific degree of filling and the interaction of both factors are the influential process parameters. These factors are relevantly affecting the melt temperature, nozzle pressure, specific mechanical energy input as well as the colouring and viscosity of the PP-cellulose fibre compounds. A higher moisture content of the cellulose fibres leads to less thermal degradation of the cellulose fibres. In case of the PLA compounds the higher moisture content results in a decrease of flexural strength. The other mechanical properties are not affected and there is no decreasing of molecular weight. For this reasons there is no need for pre-drying of the cellulose fibres, even when PLA is processed. Of course, there have to be a sufficient degassing during processing.

Cellulose fibres with a high average length and a high average aspect ratio improve the mechanical properties of the compounds. At an average length above 100 μm and an average aspect ratio >5 there is a higher tendency for agglomeration of the cellulose fibres. At the same time the viscosity of the compounds is increasing sharply. The origin and the distribution of the aspect ratio of the cellulose fibres have no influence on the properties of the produced compounds.

Comparison of the matrices shows, that PP compounds have a significantly better bonding between matrix and fibre. However, in the PLA matrix a higher volumetric fibre load can be incorporated, resulting in higher throughput at the same time.

The calculation of the properties of the PP and PLA compounds can be done by using partly adapted mechanical and rheological models. These models can be transferred on other PP and PLA fibre compounds as well.

1 Einleitung

1.1 Einführung

Der stetige Zuwachs der industriellen Produktion und die Zunahme der Forschung haben einerseits dazu geführt, dass die Menschheit über sehr gute angepasste Werkstoffe verfügt, die die Lebensqualität vieler Menschen verbessern können. Insbesondere die Entwicklung von Kunststoffen auf petrochemischer Basis hat sehr dazu beigetragen [96]. Auf der anderen Seite haben die unkontrollierte Entsorgung in der Natur und die Schadstofffreisetzung bei der Verbrennung dieser Kunststoffe für erhebliche Probleme gesorgt [69].

Ein weiteres Problem bei der Nutzung von Kunststoffen auf Basis petrochemischer Rohstoffe ist die Endlichkeit dieser Ressource. Die Angaben, wann Peak Oil (also die maximale weltweite Ölförderkapazität) erreicht ist, gehen auseinander. Das Maximum könnte bereits im Jahr 2012 erreicht gewesen sein [36], oder aber erst zwischen 2020 und 2030 [113]. Doch selbst wenn die USA zwischenzeitlich aufgrund des Erdgas-Frackings zum Energie-Exporteur werden [53], ändert das nichts an der Tatsache, dass die weltweiten Erdöl- und Erdgasvorräte in absehbarer Zeit verbraucht sein werden.

Ein zusätzliches Problem ist die weiter ansteigende Weltbevölkerung. Die weniger vorhandenen Ressourcen müssen für eine steigende Zahl an Menschen ausreichen. Die Weltbevölkerung wird bis zum Jahr 2100 auf 10,12 Milliarden Menschen anwachsen [135], wodurch es vor allem in den Schwellenländern, wie China und Indien, zu einer erhöhten Nachfrage für Erdöl und Erdgas kommen wird [35].

Aus den oben genannten Gründen ist es essentiell energieeffiziente, umweltfreundliche und nachhaltigere Werkstoffe zu entwickeln. Durch die Verwendung von Naturfasern aus nachwachsenden Rohstoffen in Verbindung mit Kunststoffen können Verbundwerkstoffe (engl. Composites) erzeugt werden. Dadurch kann ein wichtiger Beitrag zur Lösung der oben genannten Probleme geleistet werden. Bereits bestehende Herstellverfahren können weiterhin zur Produktion genutzt werden [145].

Eine weitere Reduktion des Anteils an petrochemischen Rohstoffen (Erdöl und –gas) in den Werkstoffen kann durch die Verwendung von Biokunststoffen erreicht werden, die sowohl biobasiert, als unter Umständen auch biologisch abbaubar sein können [69].

Es ist ein andauernder Wachstumstrend bei der Nutzung von Naturfasern als Füll- oder Verstärkungstoff in Kunststoffen zu erkennen [37]. Als Vorteile bei der Verwendung von Naturfasern in Kunststoffen im Vergleich zu den etablierten glasfaserverstärkten Kunststoffen sind folgende Punkte zu nennen [16]:

- Bioabbaubarkeit der Naturfasern
- Möglichkeit der thermischen Nutzung nach Gebrauch
- Geringeres spezifisches Gewicht
- Höhere spezifische Steifigkeit und Festigkeit
- Nachwachsende Ressourcen, Bindung von CO₂
- Weniger Verschleiß bei der Produktion
- Gute thermische und akustische Isolierungseigenschaften

Dem gegenüber stehen allerdings auch einige nachteilige Eigenschaften:

- Schwankende Rohstoffqualität (z.B. wetterbedingt)
- Quellung der Bauteile durch Feuchtigkeitsaufnahme der Naturfasern
- Limitierte maximale Prozesstemperatur
- Geringere Haltbarkeit
- Schwankende Preise durch Ernteaufschläge möglich

Besondere Attraktivität birgt der Einsatz der naturfaserverstärkten Kunststoffe im Automobilbau. Hier besteht ein besonderes Bedürfnis Gewicht einzusparen, um dadurch den Spritverbrauch senken zu können. Im Jahr 2005 wurden bei der Automobilproduktion in Deutschland bereits 20.000 t Naturfasern verbaut (ohne Holz und Baumwolle) [112]. Die Abbildung 1-1 zeigt ebenfalls, dass der größte Teil der in Deutschland verwendeten Wood Plastic Compounds (WPC) und Naturfaserverstärkten Kunststoffe (NFK) im Automobilbau eingesetzt werden [143] (basierend auf Zahlen von [24], [25], [26], [98], [101], [110]). Ein ansteigender Teil wird zusätzlich in der Bau- und Möbelbranche verwendet.

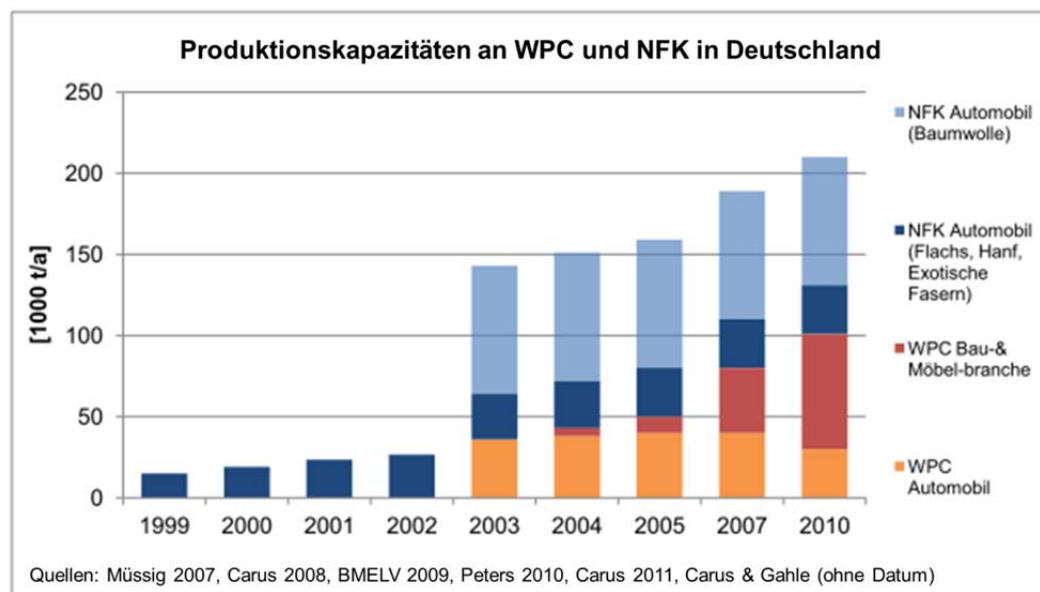


Abbildung 1-1: Produktionskapazitäten von Wood Plastic Compounds (WPC) und Naturfaserverstärkten Kunststoffen (NFK) in Deutschland [143]

Besondere Anforderungen an die Verarbeitung der WPC und NFK sind bei der

spritzgießtechnischen Herstellung von Bauteilen gegeben [11]. Die Vorteile sind hierbei, dass die Bauteile sehr komplex gestaltet werden können. Auf der anderen Seite werden die Faserverbundwerkstoffe bei der spritzgießtechnischen Verarbeitung hohen Drücken und Scherkräften ausgesetzt. In der Praxis wird dieses Herstellverfahren für NFK deshalb bisher auch nur in geringem Umfang verwendet, wie Abbildung 1-2 sehr gut veranschaulicht [143].

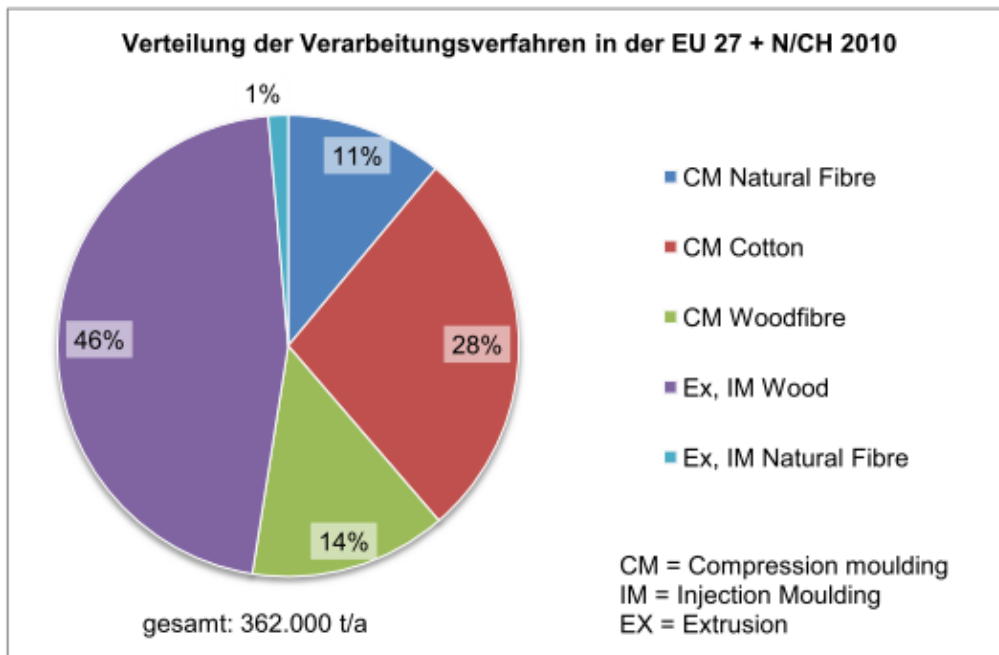


Abbildung 1-2: Verteilung der Verarbeitungsverfahren für WPC und NFK in Europa [143]

Zwar werden WPC-Werkstoffe bereits zu einem relativ hohen Anteil spritzgießtechnisch verarbeitet, der Anteil an NFK liegt jedoch lediglich bei 1% (Ex, IM Natural Fibre). Die oben gezeigte Abbildung bezieht sich ausschließlich auf den Bereich der thermoplastischen Naturfaser-Verbundwerkstoffe, der deutlich höhere Anteil der faserverstärkten Kunststoffe wird hingegen im Bereich der duromeren Verbunde eingesetzt [32]. Hinzu kommt, dass nur ca. 7% der insgesamt in Kunststoff eingesetzten Verstärkungsfasern bzw. Füllstoffe Naturfasern bzw. Naturstoffe sind (Stand 2001, Nordamerika) [95]. Das bedeutet, dass der Anteil von Naturfaserverstärkten Kunststoffen, die spritzgießtechnisch zu Bauteilen verarbeitet werden, verschwindend gering ist. In der Zukunft wird der Anteil der thermoplastischen Naturfaserverbundwerkstoffe insbesondere im Automobilbereich zunehmen. Als Grund hierfür wird vor allem die Recyclingfähigkeit der thermoplastischen Verbundwerkstoffe im Gegensatz zu den duromeren NFK genannt [146].

Es muss allerdings eine Menge Forschungs- und Entwicklungsarbeit geleistet werden, um den Anteil weiter zu erhöhen und bestehende Probleme bei der Verarbeitung zu überwinden. Diese Arbeit soll einen Anteil dazu leisten, indem die Compoundierung von Cellulosefasern mit thermoplastischen Kunststoffen, als Vorstufe für die spritzgießtechnische Verarbeitung, genauer untersucht wird.

1.2 Problemstellung und Zielsetzung

In der vorliegenden Arbeit werden die Einflüsse verschiedener verfahrenstechnischer und materialtechnischer Faktoren auf die resultierenden Eigenschaften der Naturfaserverstärkten Compounds untersucht.

Als Matrixkunststoffe werden Polypropylen (PP) und Polylactid (PLA) im Vergleich untersucht. Als Naturfasern werden unterschiedlich fraktionierte Cellulosefasern verwendet.

Der Einsatz der Cellulosefasern zur Verstärkung der PP- und PLA-Compounds ist aus folgenden Gründen sinnvoll:

- Weniger Verfärbung und weniger Geruchsbildung im Vergleich zu herkömmlichen ligninhaltigen Naturfasern [57], gerade im Automobilbereich spielt dies eine große Rolle [38].
- Bei geringerem Ligninanteil in den Fasern werden tendenziell höhere Festigkeitswerte bei den daraus hergestellten Compounds festgestellt [14].
- Durch den hohen Weißegrad kann eine thermische Schädigung durch die Verfärbung der Cellulosefasern sehr gut erkannt werden.
- Cellulosefasern sind im Gegenteil zu herkömmlichen Naturfasern (vgl. [124]) in einer gleichbleibenden Qualität erhältlich.
- Die grundsätzlich gewonnenen Erkenntnisse lassen sich auf die Verarbeitung anderer Naturfasern übertragen.

Im Bereich der extrusionstechnischen Verarbeitung wird besonderer Wert auf den Einfluss der Schneckendrehzahlen, des Spezifischen Füllgrads und der Schneckenkonfiguration gelegt. Es werden verschiedene Konfigurationen mit unterschiedlich hohem Energieeintrag insbesondere in der Aufschmelzzone des Extruders untersucht. Des Weiteren soll ermittelt werden, inwiefern die Feuchtigkeit der Cellulosefasern Einfluss auf die Bedingungen während der Compoundierung und die resultierenden Eigenschaften der Compounds hat. In Verbindung mit der wechselnden Feuchtigkeit der Cellulosefasern werden auch die Vakuumentgasung und die atmosphärische Entgasung während des Prozesses variiert, um den Einfluss dieser Faktoren auf die Zielgrößen zu verifizieren. Es wird hierbei zwischen verfahrenstechnischen und materialtechnischen Zielgrößen unterschieden. Die verfahrenstechnischen Zielgrößen können unmittelbar durch Messungen bei der extrusionstechnischen Verarbeitung bestimmt werden, die materialtechnischen Zielgrößen müssen durch eine anschließende Bearbeitung (Granulierung, Trocknung, Spritzguss) zugänglich und messbar gemacht werden.

Nach Erfassung der einflussgebenden Faktoren werden diese genauer untersucht, um die genauen Zusammenhänge und die entsprechenden Einflüsse darstellen zu können. Das Ziel ist die Erreichung einer möglichst schonenden und effizienten Compoundierung der Cellulosefasern sowohl in Verbindung mit dem

herkömmlichen Kunststoff PP als auch mit dem Biokunststoff PLA.

Im Anschluss an die Verifizierung und Quantifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter werden die Cellulosefasern hinsichtlich ihrer unterschiedlichen Eigenschaften untersucht. Hierbei wird der Fokus auf die unterschiedliche Faserlänge, die unterschiedlichen Länge-zu-Durchmesser- (L/d-) Verhältnisse, die Verteilung der L/d-Verhältnisse, die Faserkompaktierung und die Faserherkunft (Laub- oder Nadelholz) gelegt. Ziel dieser Untersuchungen ist es, die am besten geeignete Kombination der unterschiedlichen Cellulosefaser-Eigenschaften zu ermitteln und die jeweiligen Abhängigkeiten der Compoundeigenschaften zu erfassen.

Durch die Arbeit sollen auf der einen Seite die verfahrenstechnischen Einflüsse und Zusammenhänge bei der extrusionstechnischen Herstellung der Cellulosefaser-Compounds herausgestellt werden. Auf der anderen Seite werden ebenfalls die fasermorphologischen Beziehungen beleuchtet. Auf diese Weise soll ein umfassender und systematischer Überblick der einflussgebenden Parameter bei der Extrusion von Cellulosefaser-Compounds für die spritzgießtechnische Anwendung geschaffen werden. Besonders im Hinblick auf die materialtechnischen Eigenschaften, wie Zugfestigkeit, Schlagzähigkeit, Farbe, etc. gibt es noch keine strukturierten, umfangreichen Untersuchungen zu dem Einfluss der Compoundierung und der Morphologie der Cellulosefasern.

Im Verlauf der Arbeit werden folgende Hypothesen auf ihre Richtigkeit hin überprüft:

1. Die Variation der verfahrenstechnischen Parameter während der Compoundierung hat signifikanten Einfluss auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen wie z.B. die Schmelzetemperatur oder den Spezifischen Mechanischen Energieeintrag.
2. Die Variation der verfahrenstechnischen Parameter hat ebenfalls Einfluss auf die materialtechnischen Zielgrößen wie z.B. Zugfestigkeit, Schlagzähigkeit oder Viskosität.
3. Durch die geeignete Auswahl und Einstellung der Parameter bei der Extrusion der Cellulosefaser-Compounds kann eine schonende Herstellung gewährleistet werden.
4. Die beiden Matrices PP und PLA unterscheiden sich in Bezug auf die Herstellung und resultierende Eigenschaften der Cellulosefaser-Compounds.
5. Die Trocknung der Cellulosefasern vor der extrusionstechnischen Verarbeitung ist nicht zwingend notwendig.
6. Die Trocknung des PLA vor der Verarbeitung ist trotz der Hydrolyseanfälligkeit des PLA nicht erforderlich.
7. Die morphologischen Eigenschaften der Cellulosefasern wie z.B. mittlere Länge und L/d-Verhältnis haben Einfluss auf die Compoundeigenschaften.

8. Die Herkunft der Cellulosefasern (Laub- oder Nadelholz) hat einen signifikanten Einfluss auf die Eigenschaften der Compounds.
9. Die eigenschaftsbestimmenden morphologischen Faktoren der Cellulosefasern können zur Vorhersage der Compouneigenschaften anhand von mechanischen und rheologischen Modellen verwendet werden. Diese können wiederum auch auf andere (Natur-)Fasercompounds übertragen werden.
10. Durch die Variation der Dispergierungszonen können Faseragglomerate bei längeren Cellulosefasertypen reduziert bzw. verhindert werden.

2 Kenntnisstand und Grundlagen

2.1 Thermoplastische Faserverbundwerkstoffe

Als Faserverbundwerkstoffe werden solche Materialien bezeichnet, die eine Matrix besitzen, welche mit Fasern gefüllt ist [159]. Der Faserverbundwerkstoff besteht also aus mindestens zwei Komponenten. Die Verbundwerkstoffe können auf Basis duromerer oder thermoplastischer Matrices hergestellt werden [65] [159]. In dieser Arbeit werden ausschließlich die thermoplastischen Faserverbundwerkstoffe betrachtet, da diese im Vergleich zu den duroplastischen Faserverbundwerkstoffen auch spritzgießtechnisch in großen Mengen verarbeitet werden können [65]. Thermoplastische Kunststoffe zeichnen sich dadurch aus, dass sie unter Temperatureinwirkung schmelzbar sind und flüssig werden. In diesem Zustand können sie in eine beliebige Form gebracht werden, durch Abkühlen unterhalb des Schmelzpunktes wird ihre vorgegebene Form beibehalten [65].

Als Fasern werden Gebilde bezeichnet, die verglichen zu ihrem Durchmesser eine deutlich höhere Länge besitzen (L/d -Verhältnis >3). In der Regel besitzen diese Fasern aber ein deutlich höheres L/d -Verhältnis, dieses kann auch >1000 sein [127]. Die zur Herstellung thermoplastischer Faserverbundwerkstoffe verwendeten Verstärkungsfasern können natürlichen oder künstlichen Ursprungs sein.

2.1.1 Herstellverfahren für thermoplastische Faserverbundwerkstoffe

Die Herstellung thermoplastischer Verbundwerkstoffe kann auf verschiedene Arten durchgeführt werden (vgl. [37], [132], [159]):

- Formpresstechnik
- Profilziehverfahren (Pultrusion)
- Mischen
- Pull-Drill-Prozess
- Pelletisierung
- Extrusion

Die Herstellung thermoplastischer Verbundwerkstoffe erfolgt aufgrund der hohen Zykluszeiten nur in geringem Maße mittels der Formpresstechnik. Erwähnenswert ist in diesem Zusammenhang aber die Entwicklung der Herstellung glasfasermattenverstärkter Thermoplaste (vgl. [132], S. 150). Bei der Pultrusion werden ebenfalls vorrangig duromere Werkstoffe verarbeitet. Die Pultrusion wird für Thermoplaste wie z.B. Polyethylen (PE) oder PP vor allem in Kombination mit Glasfasern verwendet (vgl. [159], S. 366).

Das Mischen von thermoplastischen Verbundwerkstoffen kann mit kontinuierlichen Schneckenknetern erfolgen [132]. Diese zeichnen sich durch einen geringen Eintrag

von Scherenergie bei gleichzeitig guter Mischwirkung aus. Jedoch wird bei Schneckenknetern kein Druck während des Mischens aufgebaut, welcher nötig wäre um das Material beispielsweise durch eine Düse zu pressen. Aus diesem Grund ist zur Erzeugung von Strängen zusätzliches Equipment notwendig. Die Entgasung des Materials ist mit kontinuierlichen Schneckenknetern nur bedingt möglich (vgl. [158], S. 65).

Die Extrusion ist ebenfalls zur Herstellung thermoplastischer Verbundwerkstoffe sowie zur Verarbeitung von Kurzfasern, die in dieser Arbeit verwendet werden, geeignet. Extrusion bedeutet grundsätzlich, dass ein Material durch eine geformte Öffnung gepresst und dabei ein Strang mit gleichbleibender Gestalt hergestellt wird [86]. Eine Unterscheidung der Extrusionsmaschinen ist anhand der vorliegenden Förderschnecken möglich. Es gibt Ein-, Doppel- und Mehrschneckenextruder [76]. Die Doppelschneckenextruder sind für die Einmischung von Füllstoffen besser geeignet, als die Einschneckenextruder [91]. Bei den Doppelschneckenextrudern wird zwischen gegen- und gleichlaufenden Maschinen unterschieden, welche sich für verschiedene Aufgaben eignen. Die gleichlaufenden Doppelschneckenextruder werden aufgrund der hervorragenden Mischwirkung vorrangig zur Herstellung von thermoplastischen Verbundwerkstoffen verwendet [119]. In dieser Arbeit wird deshalb in Kapitel 2.2.2 genauer auf die Vorgänge beim Compoundieren mit gleichläufigen Doppelschneckenextrudern und deren Aufbau eingegangen.

2.1.2 Matrixkunststoffe

Die äußere Form, das Erscheinungsbild, die generelle Haltbarkeit gegen Umwelteinflüsse und die Umweltverträglichkeit von thermoplastischen Faserverbundwerkstoffen werden maßgeblich durch den Matrixkunststoff beeinflusst [37]. Die Aufgabe der Matrix ist es, die einwirkenden Belastungen auf die Verstärkungsfasern zu übertragen [27].

Als Matrixkunststoffe werden zwei unterschiedliche Polymere miteinander verglichen: Polypropylen (PP) und Polylactid (PLA). PP ist ein konventionell hergestellter, petrochemisch basierter Kunststoff, der in großen Mengen - verstärkt und unverstärkt - über ein sehr breites Anwendungsgebiet verfügt [159]. PLA ist ein vollständig biobasierter und biologisch abbaubarer Kunststoff, der durch fermentative Herstellung aus glucose- und stärkehaltigen Substraten synthetisiert wird [35].

PP ist ein teilkristalliner thermoplastischer Kunststoff. Die Verwendung ist breit gefächert: Textilindustrie, Automobilbau, Verpackungen, Medizintechnik, etc. [88]. Die Gründe dafür sind die positiven Eigenschaften des PP, wie z.B. geringe Dichte, die Beständigkeit gegen chemische Einflüsse und die einfache Verarbeitung [159]. PP muss vor der Verarbeitung nicht getrocknet werden, da es eine sehr geringe Affinität zu Wasser hat und aus diesem Grunde keines aufnimmt [88].

In Abbildung 2-1 ist die chemische Struktur von PP dargestellt [65]. PP wird durch die Polymerisation von Propylen, einem gasförmigen Nebenerzeugnis der Erdölverarbeitung, bei bestimmten Drücken und Temperaturen unter Anwesenheit von Katalysatoren hergestellt. Durch die Steuerung des Prozesses kann isotaktisches (Methyl-Gruppe einseitig entlang der Kette orientiert), syndiotaktisches (Methylgruppe ist abwechselnd orientiert) oder ataktisches (zufällige Orientierung der Methylgruppe) PP synthetisiert werden. Der Großteil der PP-Typen ist jedoch isotaktisch [88].

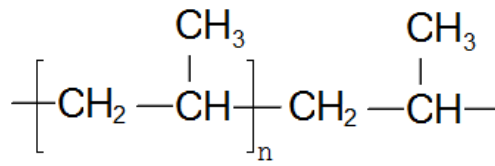


Abbildung 2-1: Strukturformel des PP

Heterophasische PP-Copolymere sind sehr spezielle PP, die eine hohe Schlagzähigkeit bei gleichzeitig hoher Transparenz aufweisen [159]. Hierbei handelt es sich um relativ neu entwickelte Block-Copolymere. In der PP-Matrix sind Ethylen-Propylen-Elastomere gleichmäßig verteilt, wodurch die Steifigkeit und auch die Zähigkeit erhöht werden. Gleichzeitig findet weniger Weißbruch statt [88].

PLA gehört zu der Familie der aliphatischen Polyester und verfügt über eine hohe Festigkeit und einen hohen E-Modul [47]. Die Eigenschaften des hochmolekularen PLA werden hauptsächlich durch die Polymerstruktur und die molare Masse bestimmt. Die Herstellung erfolgt durch eine Ringöffnungspolymerisation aus L- und D-(links- und rechtsdrehender) Milchsäure, das Molekulargewicht der Wiederhol-einheit (siehe Abbildung 2-2) beträgt 72 g/mol [4].

Weitere positive Eigenschaften des PLA sind die hohe Transparenz, die hohe Kratzfestigkeit, die Kompostierbarkeit und die Beständigkeit gegen Fett, Wasser und Alkohol. Außerdem ist es lebens-

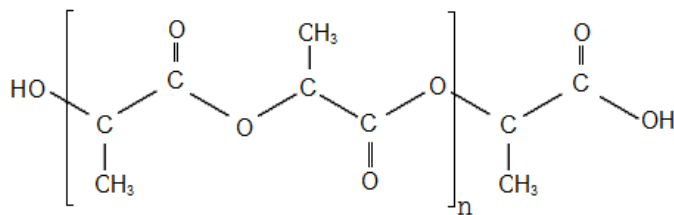


Abbildung 2-2: Strukturformel des PLA

mittelrechtlich zugelassen [35]. Zu den Eigenschaften, die einem technischen Einsatz des PLA am stärksten widersprechen, zählen die Anfälligkeit gegen Hydrolyse, insbesondere bei der spritzgießtechnischen Verarbeitung, die geringe Wärmeformbeständigkeit und die geringe Schlagzähigkeit [35].

PLA ist mäßig polar und ein relativ langsam kristallisierendes Polymer, die Kristallisationsgeschwindigkeit nimmt jedoch mit abnehmender Kettenlänge zu [4]. Weitere Möglichkeiten der Beschleunigung der Kristallisation ist die Zugabe von Nukleierungsmitteln (Talkum, etc.) oder auch Naturfasern [35]. Die Kristallinität des PLA bestimmt ebenfalls über die Geschwindigkeit des hydrolytischen Abbaus. Liegt das

PLA amorph vor, findet der Abbau innerhalb weniger Wochen statt, im hochkristallinen Zustand kann der Abbau hingegen Monate bis Jahre dauern [47]. Der Hydrolyse während der Verarbeitung und in der Gebrauchsphase kann mit entsprechenden Stabilisatoren effektiv entgegengewirkt werden (vgl. [133], S. 201).

2.1.3 Faserkomponente

2.1.3.1 Einteilung der Fasern nach morphologischen Eigenschaften

Die Verstärkungsmaterialien der Verbundwerkstoffe werden in verschiedene Klassen eingeteilt, wobei die genauen Zuordnungen nicht einheitlich sind. Die grundsätzliche Einteilung erfolgt jedoch relativ übereinstimmend in

- Partikel/Füllstoff,
- Kurzfasern,
- Langfasern und
- Endlosfasern.

Die Fasern, die zur Verstärkung der Verbundwerkstoffe eingesetzt werden, können hinsichtlich ihrer morphologischen Erscheinung eingeteilt werden. Die wichtigsten Parameter sind hierbei die mittlere Länge, die längenbezogene Masse, die Querschnittsfläche der Faser oder aber auch der Durchmesser bzw. die Dicke der Faser sowie das Verhältnis von Länge zu Durchmesser (L/d-Verhältnis, Aspect Ratio) [99].

Nach dem Handbuch des AVK¹ [159] sind Partikel bzw. Füllstoffe alle Materialien mit einem Längen-zu-Durchmesser-Verhältnis (L/d-Verhältnis, Aspect Ratio) von 1-10. Kurzfasern haben demnach ein Aspect Ratio von 10-100, (bzw. eine Länge >0,1 mm) und Langfasern von 100-10.000. Bei einem L/d-Verhältnis >10.000 handelt es sich um Endlosfasern. Füllstoffe und Kurzfasern führen hiernach zu einer Erhöhung des E-Moduls und nur zu geringer Erhöhung der Zugfestigkeit. EHRENSTEIN [32] teilt die Fasern der Länge nach ein. Kurzfasern sind demnach bis 0,2 mm lang und werden vorrangig im Spritzgießbereich zur Versteifung und Verstärkung eingesetzt, Langfasern sind bis zu 25 mm lang und Endlosfasern länger als 25 mm. FLEMMING et al. [39] bezeichnen auch eine Faser von 3 mm Länge noch als Kurzfaser. In dieser Arbeit soll die Einteilung des AVK zur Definition von Partikel, Kurz- oder Langfaser verwendet werden.

2.1.3.2 Verstärkende Wirkung der Faserkomponenten

Bei endlosfaserverstärkten Verbundwerkstoffen wird grundsätzlich von einer Verstärkungswirkung der Fasern ausgegangen, sobald die folgenden Bedingungen er-

¹ Industrievereinigung Verstärkte Kunststoffe e.V., Fachverband für Faser-Kunststoff-Compounds

füllt sind: Die Verstärkungsfasern besitzen eine höhere Festigkeit, eine höhere Steifigkeit und eine niedrigere als bzw. gleiche Dehnung wie die Matrix [32]. In diesem Fall ist die Zugfestigkeit des Verbundwerkstoffes bei guter Faser-Matrix-Haftung so hoch, wie die des verwendeten Faser-Rovings.

Werden allerdings Kurzfasern zur Verstärkung eingesetzt, gelten andere Gesetzmäßigkeiten. Bei der Verstärkung bzw. Füllung von Kunststoffen mit diskontinuierlichen Fasern entscheidet die kritische Faserlänge bzw. der kritische Aspect Ratio der Faser über die verstärkende Wirkung, unterhalb der kritischen Faserlänge kommt es zum Faser-Pullout (Herausziehen der Faser aus der Matrix). Ist die Faser länger als die kritische Faserlänge, so reißt die Faser. Die kritische Faserlänge wird nach KELLY und TYSON [72], wie in Gleichung 2-1 dargestellt, berechnet:

$$L_{kr} = \frac{d \cdot \sigma_f}{2 \cdot \tau_m} \quad \text{Gleichung 2-1}$$

Mit σ_f = Zugfestigkeit der Faser d = Faserdurchmesser

τ_m = Schubfestigkeit der Matrix, bzw. der Faser-Matrix-Grenzfläche

Die kritische Faserlänge markiert den Übergang zwischen dem Herausziehen der Faser ($L_F < L_{kr}$) und dem Reißen der Faser ($L_F \geq L_{kr}$). Erst bei Überschreitung der kritischen Faserlänge L_{kr} kann die volle Zugfestigkeit der Fasern ausgenutzt werden [159], unterhalb der kritischen Faserlänge wird die Festigkeit des Verbunds durch die Matrix oder durch den Grenzflächenwiderstand bzw. der Grenzflächenscherfestigkeit von der Faser zur Matrix bestimmt. Beide sind jedoch kleiner als die Zugfestigkeit der Faser [97].

Bei vollständig an die Matrix angebundenen Fasern, also einer hohen Grenzflächenscherfestigkeit, ist eine hohe Kraftübertragung während der mechanischen Belastung möglich. Ist die Grenzflächenscherfestigkeit dagegen gering, so kann nur wenig Kraft von der Matrix auf die Faser übertragen werden und es ist deutlich weniger Energie notwendig, um die Fasern aus der Matrix herauszulösen. In diesem Fall ist die Folge eher ein Herausziehen (engl. Pullout) der einzelnen Faser, weniger ein Bruch oder Reißen. Die Festigkeit des Compounds ist bei gleicher Faserlänge dann geringer [129].

Ergänzend zur kritischen Faserlänge kann auch der kritische Aspect Ratio der Fasern, α_{kr} , nach Gleichung 2-2 [160] berechnet werden:

$$\alpha_{kr} = \frac{\sigma_f}{2 \tau_m} \quad \text{Gleichung 2-2}$$

Die aufzunehmende Spannung, welche während des Faser-Pullouts mit steigender Faserlänge bis zum Erreichen der kritischen Faserlänge zunimmt, ist schematisch in Abbildung 2-3 dargestellt.

Laut JANDA (vgl. [65], S. 141) sind die berechneten Werte für die kritische Faserlänge deutlich niedriger, als die tatsächlich experimentell ermittelten Werte, diese liegen 10 bis 100-mal höher. Die Gründe hierfür sind suboptimale Haftung zwischen Faser und Matrix und nicht ideales viskoelastisches Verhalten der Matrix [65].

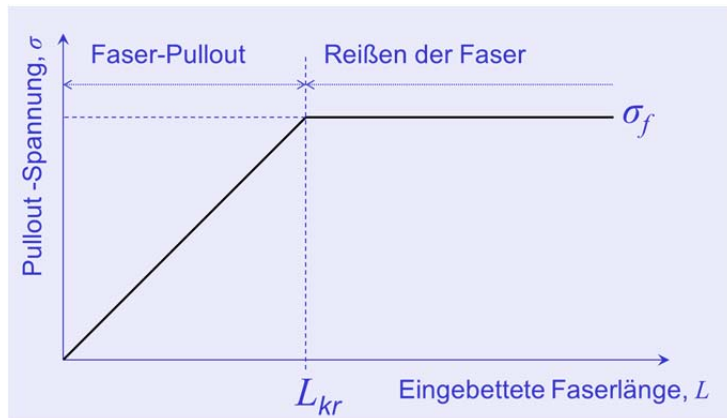


Abbildung 2-3: Schema der Faser-Pullout-Kurve, basierend auf dem Pullout-Test (vgl. [97], S. 247)

Die oben genannten Bedingungen gelten für eine Belastung des Verbundwerkstoffes in Richtung der Faserorientierung. Greift die Kraft quer zur Faserorientierung an, so ist die ertragbare Belastung bei der Zugbeanspruchung deutlich geringer [65]. Laut GIBSON ist die Zugfestigkeit bei transversaler Belastung zur Faserausrichtung stets die geringste. Bei der Betrachtung der Zugfestigkeit von kurzfaserverstärkten Compounds mit zufällig orientierten Fasern muss die Zugfestigkeit quer zur Faserorientierung mit einbezogen werden [50].

Die Steifigkeit des Verbundwerkstoffes ist ebenfalls von der Orientierung der Fasern und der Richtung der angreifenden Kraft abhängig. In Richtung der Faserorientierung können um den Faktor zwei höhere E-Moduln erreicht werden [65]. Bei langen Fasern ist in Angriffsrichtung der Kraft eine lineare Zunahme des E-Moduls bei steigendem Volumenanteil des Füllstoffes anzunehmen. Bei zufällig verteilten kurzfasersartigen Partikeln ist eine leicht erhöhte Zunahme des E-Moduls im Vergleich zu kugelförmigen Partikeln zu erwarten. Allerdings ist die Zunahme des E-Moduls nicht linear und deutlich geringer als bei den ausgerichteten Langfasern [160]. Anders als bei der Zugfestigkeit gibt es bei der Steifigkeit aber keine untere Füllstoffgrenze. Bei der Zugfestigkeit ist erst ab einem gewichtsmäßigen Faseranteil von 15% eine Verstärkungswirkung erkennbar, bei der Steifigkeit gibt es solch ein Phänomen nicht [60].

2.2 Extrusionstechnische Compoundierung von naturfaserverstärkten Kunststoffen

2.2.1 Naturfasern als Verstärkungskomponente

2.2.1.1 Allgemeines zu Naturfasern

Die Unterteilung der Naturfasern erfolgt nach Gessner [49] und in Anlehnung an DIN 60001 [163] in pflanzliche, tierische und anorganische Fasern, siehe Abbildung 2-4. Die anorganischen Naturfasern werden inzwischen nicht mehr in der DIN-Norm aufgeführt. Im Folgenden wird auf die Eigenschaften der pflanzlichen Naturfasern näher eingegangen.

Die pflanzlichen Naturfasern bestehen zum überwiegenden Teil aus Cellulose. Der Anteil an Cellulose in den Pflanzenfasern schwankt je nach Faserart und -herkunft zwischen 57-77% (Hanf) und 85-90% (Baumwolle) [40]. Weitere Bestandteile sind Hemicellulosen, Lignin, Peptide und Mineralstoffe. Der variierende Anteil dieser verschiedenen Bestandteile bestimmt zusammen mit dem

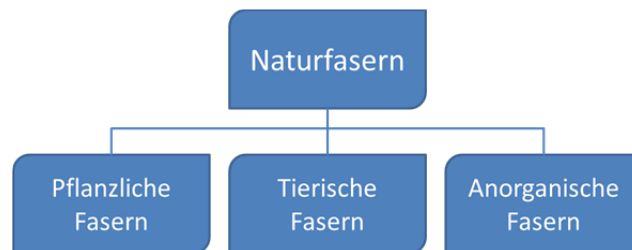


Abbildung 2-4: Einteilung der Naturfasern nach GESSNER [49]

Celluloseanteil über die Gesamteigenschaften der jeweiligen Fasertypen [149].

Pflanzliche Naturfasern sind in verschiedenen Qualitäten und nahezu allen Mengen verfügbar. Die Preisspanne reicht von 0,4-0,5 €/kg für Kokosfasern (in 2007, [112]) bis zu 0,96 €/kg für Baumwolle (Dez. 2007, [161]). Dabei ist auch festzustellen, dass die Preise für die Pflanzenfasern je nach Erntemenge und Nachfrage sehr stark schwanken können. Der Preis für Baumwolle lag im Februar 2011 z.B. bei einem bisherigen Höchststand von 2,78 €/kg [162].

Der Einsatz der pflanzlichen Naturfasern in der Industrie ist vielfältig. Die Fasern können z.B. in der Textilindustrie (Bekleidung, Stoffe, Planen, Netze, Geotextilien, etc.), der Papierindustrie (Papier, Pappe, etc.), als Baumaterial (Wärmedämmung, Faserzementplatten, etc.) und in vielen anderen Bereichen eingesetzt werden (vgl. [54], [58]). Im Bereich der naturfaserverstärkten Kunststoffe (NFK) sind vorrangig langfaserverstärkte duromere Werkstoffe im Einsatz [24].

2.2.1.2 Einordnung der Holzfasern

Die Holzfasern als Rohstoff der Cellulosefasern, welche als Verstärkungsfasern in dieser Arbeit eingesetzt werden, sind entsprechend der Abbildung 2-5 im Bereich der pflanzlichen Fasern einzuordnen.

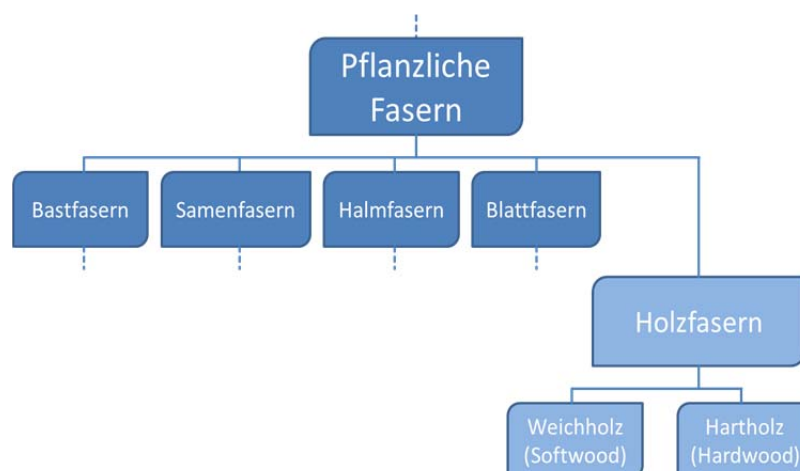


Abbildung 2-5: Einordnung der Holzfasern innerhalb der pflanzlichen Naturfasern (vgl. [18], [100])

Der grundsätzliche Aufbau der Holzfasern ist bei Soft- und Hardwood gleich und

in Abbildung 2-6 dargestellt. Die einzelnen Fasern werden durch die Mittellamelle (ML) fixiert. Die ML besteht zu über 90% aus Lignin [21], in ihr sind ca. 75% des gesamten Lignins enthalten [85]. Die Tracheiden (Softwood) bzw. Libriformfasern (Hardwood) bestehen aus einer Primärwand (P) und drei Sekundärwandschichten (S1, S2 und S3). Diese drei Schichten sind zusammengesetzt aus Cellulosefibrillen, die in einer amorphen Matrix aus Hemicellulose und Lignin eingebettet sind [140]. In der Mitte der Fasern ist das Lumen befindlich, welches dem Wasser- und Nährstofftransport dient [21].

Die Primärwand (P) ist 0,1- 0,2 μm dick (vgl. [21], [75]) und besteht aus einem Geflecht ungeordneter Cellulosefibrillen und Lignin. Die dünne Sekundärwand S1 ist 0,12- 0,35 μm dick [75], die Mikrofibrillen sind hierin in einem Winkel von 40-50° zur Faserachse geordnet, aber nicht vollkommen parallel ausgerichtet [85]. Die Sekundärwand S2 ist 1-5 μm dick (vgl. [75], [85]). Die Mikrofibrillen der S2 sind hochgradig orientiert und verlaufen fast parallel zur Faserrichtung [85]. Durch geringfügige Änderungen der Winkel in den einzelnen Schichten entsteht eine lamellenförmige Struktur. In der S2-Schicht befinden sich nur sehr wenig Lignin und Hemicellulose [21], sie enthält jedoch 80-90% des Faserwand-Materials [140]. Die S3-Schicht ist ca. 0,1- 0,14 μm dick [75] und ähnlich aufgebaut wie die S1-Schicht [21].

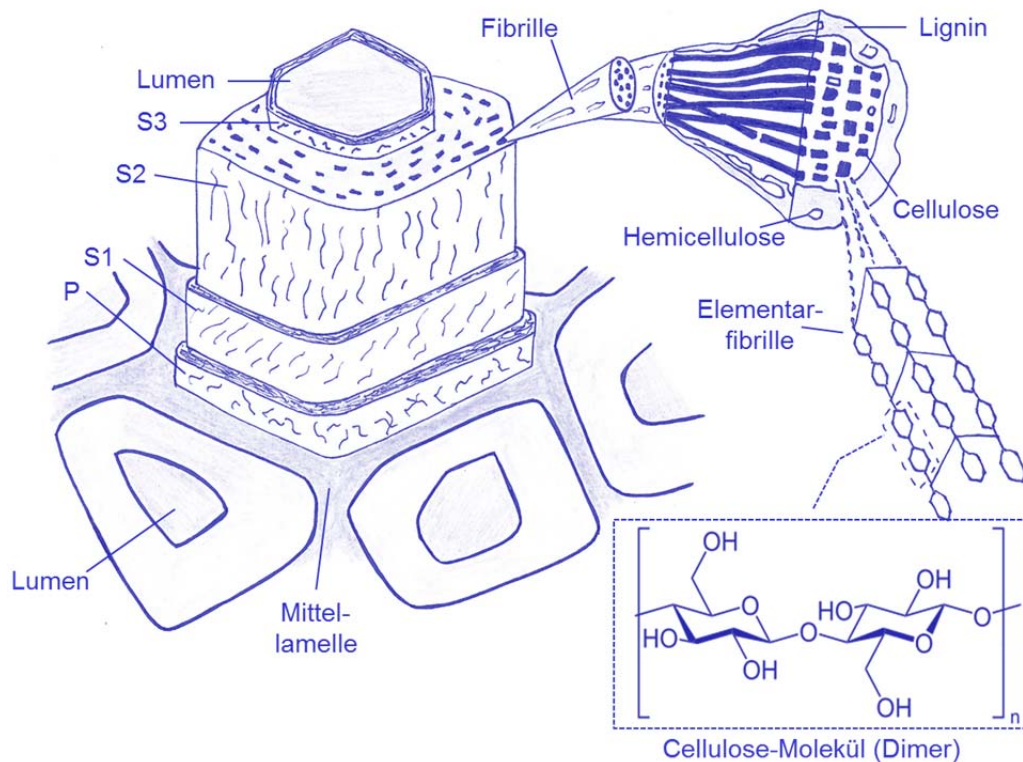


Abbildung 2-6: Aufbau einer Holzfaser und Struktur der Cellulose (basierend auf Abbildungen von [21], [75], [140])

Cellulose ist ein Homopolymer, bestehend aus D-Glucopyranose-Einheiten (D-Glucose), die β-glycosidisch miteinander verknüpft sind. Die kleinste sich wiederholende Einheit ist die Cellobiose [75]. Weitere wichtige Bestandteile der Holzfasern sind das Lignin und die Hemicellulosen, sowie Extraktstoffe. Das Lignin besteht aus Phenylpropaneinheiten [21] mit unterschiedlichem Molekulargewicht und zeigt kolloidchemische Eigenschaften auf [85]. Lignin ist wasserfest, hydrophob und sorgt für die hohe Steifigkeit von Holz [21]. Die Hemicellulosen sind Heteropolysaccharide und unterscheiden sich von der Cellulose dadurch, dass sie niedrigere Polymerisationsgrade von lediglich 50-200 Molekülen aufzeigen [75]. Die Hemicellulosen sind außerdem deutlich hydrophiler als die Cellulose [21]. Weiterhin gibt es die extrahierbaren organischen Stoffe, die etwa 3-10% der Masse des Holzes ausmachen [21].

Die Holzfasern können aus Hart- oder Weichholz (Laub- oder Nadelholz) durch mechanische Aufschlussverfahren gewonnen werden. Hierbei werden die im Holz enthaltenen chemischen Stoffe nicht entfernt, die Ausbeute ist sehr hoch (90-96%), da das Lignin in diesem Prozess nicht herausgelöst wird [21].

2.2.1.3 Bereitstellung von Cellulosefasern

Zur Gewinnung der Cellulosefasern wird das Lignin aus dem Holz entfernt, dies geschieht durch eine thermomechanische oder chemische Behandlung von Holzhackschnitzeln mit anschließender Bleichung. Der chemische Aufschluss dominiert hier-

bei im weltweiten Vergleich deutlich mit einem Anteil von ca. 80% [138]. Bei dem chemischen Aufschlussverfahren gibt es zwei dominierende Prozesse, das Sulfit- und das Sulfatverfahren (Kraft Pulping). Das Sulfatverfahren hat sich mittlerweile zum Hauptverfahren entwickelt, es wird für 89% der chemisch aufgeschlossenen Faserstoffe verwendet. Nur 5,3% der weltweiten Faserstoffherstellung erfolgt durch das Sulfitverfahren [138].

Beim Sulfatverfahren werden Holzhackschnitzel, die nicht dicker als 8 mm sein sollten, in einer wässrigen sogenannten Weißlauge (NaOH , Na_2) bei einer Temperatur von 160-180°C und einem pH-Wert von 14 für 1-3 Stunden gekocht. Dabei quillt die Holzstruktur auf und das Lignin löst sich heraus [21]. Durch das Kochen entsteht aus der Weißlauge die Schwarzlauge, hierin sind die Reaktionsprodukte des Lignins enthalten. Diese Schwarzlauge wird aufkonzentriert und im Rückgewinnungssofen verbrannt, wobei die anorganische Schwarzlaugenschmelze, bestehend aus Natriumcarbonat (Na_2CO_3) und Natriumsulfid (Na_2S), zurückbleibt. Durch Lösen dieses Rückstandes wird Grünlauge hergestellt, welche wiederum mit gebranntem Kalk (CaO) in Verbindung gebracht wird, wodurch dann Natriumhydroxid (NaOH) entsteht. Mit der Grünlauge wird die ursprüngliche Weißlauge regeneriert. Diese Rückgewinnung der Aufschlusschemikalien, verbunden mit der Energiegewinnung aus der Schwarzlaugenverbrennung, sind die Gründe für die wirtschaftliche Überlegenheit des Sulfat-Aufschlussverfahrens [140].

Die anschließende Bleichung des Faserzellstoffes soll den Anteil an Rest-Lignin von 3-5% [21] aus dem Material entfernen, da das Lignin nach der chemischen Behandlung stark verfärbt ist [139]. Für die Bleichung der Zellstoffe werden heutzutage aus Umweltgründen elementar-chlorfreie (ECF) oder total-chlorfreie (TCF) Verfahren angewendet. In einer abwechselnden, aufeinander abgestimmten Behandlungsreihenfolge erfolgt die Entfernung des Restlignins aus dem Zellstoff. Die aromatischen Ringe des Lignins werden hierbei durch Oxidation aufgebrochen und die Lignin-Abbauprodukte sind dann mittels einer Alkaliextraktion austragbar [21].

Das Herauslösen des Lignins aus den Fasern bewirkt eine deutliche Verbesserung der Eigenschaften des Zellstoffes für die Papierherstellung [85].

2.2.1.4 Cellulosefasern: Soft- und Hardwood

Die Cellulosefasern können sowohl aus Soft- als auch Hardwood gewonnen werden. Die Bezeichnung Softwood bezieht sich hierbei auf Holz von Nadelhölzern (Nacktsamige Baumarten) und das Hardwood ist das Holz von Laubbäumen (Bedecktsamige Baumarten) [145]. Es ist generell zwischen den Eigenschaften des Ausgangsrohstoffes für die Cellulosefasern und den resultierenden Eigenschaften nach dem Faseraufschluss zu differenzieren. Zunächst werden deshalb die Unterschiede zwischen Soft- und Hardwood im ursprünglichen Zustand vor dem Faseraufschluss beschrieben.

Die Softwood-Hölzer (Nadelholz) sind grundsätzlich weniger komplex aufgebaut als die Hardwood-Hölzer (Laubholz) [52]. Während Softwood lediglich aus zwei Hauptarten von Gewebezellen besteht, den länglichen Tracheiden und den strahlenförmigen Parenchymzellen [145], sind im Hardwood sogenannte Libriformzellen und Tracheiden und zusätzliche Tracheen (Gefäßelemente) vorhanden [85]. Des Weiteren unterscheiden sich Hard- und Softwood in den Anteilen der verschiedenen Holzbestandteile (siehe Tabelle 2-1).

Tabelle 2-1: Anteile der Holzbestandteile in Soft- und Hardwood [75]

Anteile [%]	Softwood (Nadelholz)	Hardwood (Laubholz)
Cellulose	40-44	43-47
Hemicellulose	25-29	25-35
Lignin	25-31	16-24
Extraktstoffe	1-5	2-8

Der Anteil an Cellulose in Soft- und Hardwood ist ungefähr gleich, beim Hardwood ist ein höherer Anteil an Hemicellulose feststellbar. Beim Softwood ist der Ligninanteil höher. Die Extraktstoffe sind beim Hardwood anteilig tendenziell höher.

In Tabelle 2-2 sind maßgebliche Eigenschaften von verschiedenen Soft- und Hardwoodtypen im Vergleich dargestellt. Die Eigenschaften werden durch den unterschiedlichen morphologischen Aufbau der Holzarten hervorgerufen. Softwood dient z.B. aufgrund des höheren Aspect Ratios (L/d-Verhältnis) und der regelmäßigen Lumenstruktur bevorzugt für die Herstellung von WPC [52]. Wegen der im Hardwood vorhandenen Gefäßelemente ist der Anteil an Fasern im Softwood deutlich höher. Auch die Faserlänge beim Softwood ist zwei- bis dreimal so hoch wie beim Hardwood. Die maximale Reißlänge der Softwoodfasern ist zwar höher, als die der Hardwoodfasern, allerdings schwanken die Werte beim Hardwood nicht so stark. Beim Vergleich der Schüttdichte der Holzfasern zeigt sich, dass die Hardwoodfasern eine deutlich höhere Schüttdichte aufweisen. Dies ist bei der Herstellung von WPC oder NFK ebenfalls von Vorteil [56].

Die Tabelle zeigt auch, dass die Werte innerhalb der Hardwood-Baumarten teilweise sehr unterschiedlich sind. Der Grund hierfür ist der komplexere Aufbau der Laubhölzer. Die Unterschiede zwischen den verschiedenen Softwoodhölzern sind dagegen marginal [145].

Tabelle 2-2: Eigenschaften von Soft- und Hardwoodfasern im Vergleich (F=Fichte, Bi= Birke, Bu= Buche, Pa= Pappel, A= allgemeine Werte für Soft- bzw. Hardwood)

Eigenschaft	Softwood (Nadelholz)	Hardwood (Laubholz)		Quelle
Faseranteil [%]	95,3 ^(F)	64,8 ^(Bi)	37,4 ^(Bu)	[85]
Anteil Gefäße [%]	-- ^(F)	24,3 ^(Bi)	31,0 ^(Bu)	[85]
Parenchymzellen [%]	-- ^(F)	-- ^(Bi)	4,6 ^(Bu)	[85]
Faserlänge [mm]	1,1-6,0 ^(F)	0,5-2,0 ^(Bi)	0,4-1,9 ^(Bu)	[85]
Faserdurchmesser [µm]	21-40 ^(F)	9-29 ^(Bi)	10-27 ^(Bu)	[85]
Wanddicke [µm]	-- ^(F)	2,4-7,2 ^(Bi)	2,5-12 ^(Bu)	[85]
Aspect Ratio	4 ^(A)	3 ^(A)		[52]
Reißlänge [m]	4000-10000 ^(F)	8000-9000 ^(Pa)		[85]
Dehnung [%]	3-4 ^(F)	3,5-4,0 ^(Pa)		[85]
Schüttdichte [kg/m³]	112-272 ^(A)	176-336 ^(A)		[52]
Max. Feuchtigkeitsaufnahme [%]	550 ^(A)	400 ^(A)		[52]

Die Darstellung der Eigenschaften der aufgeschlossenen Cellulosefasern, differenziert nach ihrer Herkunft (Soft- oder Hardwood), erfolgt in Tabelle 2-3.

Tabelle 2-3: Eigenschaften von aufgeschlossenen Soft- und Hardwoodfasern im Vergleich (F=Fichte, Bi= Birke, Bu= Buche)

Eigenschaft	Softwood (Nadelholz)	Hardwood (Laubholz)	Quelle
Faserlänge [mm]	3,5 ^(F)	1,8 ^(Bi)	[140]
Durchmesser [µm]	25-30 ^(F)	20-36 ^(Bi)	[140]
Kappa-Zahl [/]	0,5 ^(F)	0,8 ^(Bu)	[137]
Helligkeit [% ISO]	90,7 ^(F)	87,6 ^(Bu)	[137]
Wasserrückhaltevermögen [%]	80,6 ^(F)	92,8 ^(Bu)	[137]
Nullreißfestigkeitsindex [Nm/g]	133,7 ^(F)	98,8 ^(Bu)	[137]

Das Verhältnis der Länge der aufgeschlossenen Fasern von Soft- und Hardwood bleibt im Vergleich zu den unaufgeschlossenen Holzfasern gleich. Die Softwoodfasern sind deutlich länger, als die Hardwoodfasern. Beim Faserdurchmesser sind bei den Hardwoodfasern höhere Schwankungen und auch höhere maximale Durchmesser zu verzeichnen. Dies hängt mit den beim Hardwood vorhandenen Gefäßelementen zusammen, die eine deutlich höhere Dicke als die Libriformfasern aufweisen und auch für schwankende Eigenschaften des Hardwoods sorgen [140]. Die Kappa-Zahl, als Maß für die bleichbaren Reststoffe [21], unterscheidet sich bei den Hard- und Softwoodfasern nur geringfügig. Aufgrund des höheren Wasserrückhaltevermögens der Hardwood-Fasern ist hier auch von einer höheren Materialfeuchte vor der Verarbeitung auszugehen. Der Nullreißfestigkeitsindex ist ein Maß für die maximale Festigkeit von aufgeschlossenen Fasern. Hierbei wird ein Papierbogen, in dem die Fasern unorientiert vorliegen, auf Zug beansprucht und die maximale Zugfestigkeit ermittelt [165]. Der Nullreißfestigkeitsindex der Softwoodfasern liegt deutlich höher, als der von Hardwoodfasern.

2.2.1.5 Thermische Beanspruchung bei der Verarbeitung

Bei der extrusionstechnischen Verarbeitung der Cellulosefasern werden diese in hohem Maße thermomechanischen Einflüssen ausgesetzt. Die Zugabe der Cellulosefasern zu dem aufgeschmolzenen Polymer erfolgt über eine Seitenfüttereinrichtung. Die Temperatur des Polymers liegt hier oberhalb der Schmelztemperatur, bei PLA ist diese 165°C [164] und bei PP 160-165°C [105].

Durch die hohe Temperatur wird die gegebenenfalls in den Cellulosefasern enthaltene Feuchtigkeit schlagartig verdampft, wodurch die Cellulosefasern geschädigt werden können. Es laufen Prozesse ab, die mit denen des Dampf-Explosions-Aufschlusses (Steam Explosion Pulping, SEP) vergleichbar sind. Bei diesem Verfahren wird der Faseraufschluss durch sehr kurze Kochzeiten in Verbindung mit explosiver Dekompression bei Temperaturen von 180-210°C durchgeführt [77]. Es kann somit nachträglich zu einer weiteren Beschädigung der Fasern durch die hohen Druckunterschiede kommen.

Die hohe Temperatur in der Polymerschmelze kann ebenfalls zur Schädigung der Cellulosefasern führen. Bei einer Temperatur von 160°C erfolgt die Degradation der Cellulose zu kohlenhydrathaltigen und ligninartigen Materialien, der Abbau ist stark abhängig von der Verweilzeit [152]. BANDYOPADHYAY-GHOSH et al. haben eine Zersetzungstemperatur für Cellulose-Nanofasern von 296°C ermittelt [9]. Die Ergebnisse der Untersuchungen zur Auswirkung der Temperatureinwirkung auf cellulosehaltige Materialien sind oft widersprüchlich. STAMM hat berichtet, dass die Festigkeit von Baumwoll- und Papierfasern durch Erhitzung (120-150°C für >72h) abnimmt [142]. SAPIEHA et al. haben jedoch bei der Untersuchung von Cellulose-Compounds festgestellt, dass die maximale Spannung und Dehnbarkeit der Compounds mit zuneh-

mender Verarbeitungstemperatur und -zeit zunimmt. Die maximale Streckgrenze ist bei ca. 225°C erreicht. Erwähnung findet auch, dass mit der ansteigenden Verarbeitungstemperatur (150-250°C) eine zunehmende Verfärbung verbunden ist. Des Weiteren wird festgestellt, dass die Verfärbung der Compounds mit zunehmender Ausgangsfeuchtigkeit des Fasermaterials ansteigt [123].

Die Aktivierungsenergie zur Zersetzung von Cellulose beträgt 175,6 kJ/mol [48] bzw. 184,2 kJ/mol [45].

2.2.1.6 Faser-Matrix-Grenzflächenverhalten

Das Faser-Matrix-Grenzflächenverhalten ist sehr wichtig für die Eigenschaften von faserverstärkten Kunststoffen. Die geringe Haftung zwischen den Komponenten sorgt für minderwertige Eigenschaften der Compounds [120] und stellt hier das Hauptproblem dar [19]. Es gibt verschiedene Wege zur Verbesserung der Faser-Matrix-Haftung, wie z.B. physikalische Methoden (Fibrillierung, elektrische Entladung), alkalische Behandlung der Fasern, Imprägnierung der Fasern mit flüssigen Monomeren und anschließender in-situ-Polymerisation oder auch die Silanbehandlung [41].

Für die Kompatibilisierung von polaren Verstärkungsfasern (z.B. Cellulosefasern) in einer unpolaren Matrix (z.B. Polypropylen) hat sich die Verwendung von Maleinsäureanhydrid-gepfropften Polypropylen (MSA-g-PP) durchgesetzt [19]. Die funktionelle Gruppe des MSA-g-PP reagiert mit denen der Naturfaser und es entsteht eine kovalente Bindung [70]. Verschiedene Arbeiten haben die Wirksamkeit von MSA-g-PP in Verbindung mit cellulosebasierten Naturfasern und PP gezeigt. KURNIAWAN et al. konnten z.B. die Zugfestigkeit von mit 50 wt.-% Holzmehl gefülltem PP um ca. 35% steigern [82]. Bei Untersuchungen von QIU et al. hat sich gezeigt, dass die Zugabe von 2 wt.-% MSA-g-PP (0,6% MSA-Anteil) bei einem Cellulosefaseranteil von 30 wt.-% bereits ausreicht, um die Zugfestigkeit eines PP-Compounds um 30% zu erhöhen [114]. ENDRES et al. haben gezeigt, dass beim Einsatz von MSA-g-PP die optimale Dosierung in Abhängigkeit von den Eigenschaften des MSA-g-PP-Haftvermittlers entscheidend ist [34].

PLA ist hydrophil und ebenfalls, wie die cellulosebasierten Naturfasern, polar [35]. Aus diesem Grunde ist von einer grundsätzlich besseren Faser-Matrix-Haftung als bei den PP-Naturfaser-Systemen auszugehen. Trotzdem wurden auch bei PLA-Naturfaser-Compounds Untersuchungen zur Verbesserung der Kompatibilität durchgeführt. ARIAS et al. haben die Wirksamkeit von Maleinsäureanhydrid gepfropftem PLA (MSA-g-PLA) in Verbindung mit Flachsfasern untersucht. Die Ergebnisse zeigten keine signifikanten Steigerungen der mechanischen Kennwerte [3]. Bei einem ähnlichen Vorgehen bei PLA-Kenaf-Compounds in Verbindung mit MSA-g-PLA konnten AVELLA et al. die Schlagzähigkeit um mehr als 50% und die Biegefestigkeit um mehr als 25% erhöhen [7]. LEE et al. haben bei PLA-Compounds mit Bambusfa-

sen eine Erhöhung der Zugfestigkeit um bis zu 45% durch Zugabe von 0,65% L-lysine-diisocyanate (LDI) erzielt [84].

2.2.2 Der gleichläufige Doppelschneckenextruder

Gleichläufige Doppelschneckenextruder werden hauptsächlich zum Mischen von verschiedenen Kunststoffen (Blending) oder auch dem Einmischen von Feststoffen, Additiven oder Fasern in Kunststoffe verwendet [76]. Gleichläufige Doppelschneckenextruder besitzen zwei Schnecken, die sich in gleicher Richtung und mit gleicher Geschwindigkeit drehen. Die Schnecken reinigen dabei jeweils die angrenzende Schnecke, es wird von einem dichtkämmenden System gesprochen [56]. Sie zeichnen sich durch sehr gutes distributives und dispersives Mischverhalten aus, welche, in Verbindung mit dem modularen Aufbau und der damit verbundenen hohen Anpassungsfähigkeit an verschiedene Prozesse, die herausragenden Vorteile dieser Extruder-Bauart sind [158]. Weiterhin weisen die Doppelschneckenextruder ein gutes Einzugsverhalten, kurze Verweilzeiten und selbstreinigende Schnecken auf [56].

Ein sehr wichtiger verfahrenstechnischer Parameter ist der Spezifische Mechanische Energieeintrag (SME). Die Gleichung 2-3 beschreibt die Berechnung des SME:

$$SME = \frac{2 \cdot \pi \cdot f_{rot} \cdot M \cdot 0,001}{\dot{m}} = \left[\frac{kJ}{kg} \right] \quad \text{Gleichung 2-3}$$

Mit f_{rot} = Drehzahl [min^{-1}] M = Drehmoment [Nm]

\dot{m} = Durchsatz [kg/min]

Der SME steigt bei gleichbleibendem Durchsatz und steigender Schneckendrehzahl an und verringert sich bei gleichbleibender Drehzahl und erhöhendem Durchsatz [119].

Eine weitere verfahrenstechnische Größe ist der Spezifische Füllgrad oder auch die spezifische Fördermenge. Der Spezifische Füllgrad $FG_{spez.}$ wird nach folgender Gleichung 2-4 berechnet (vgl. [128]):

$$FG_{spez.} = \frac{\dot{m}}{f_{rot}} = \left[\frac{kg \cdot min}{h} \right] \quad \text{Gleichung 2-4}$$

Mit \dot{m} = Durchsatz [kg/h] f_{rot} = Drehzahl [min^{-1}]

Dieser Wert dient als Vergleichsgröße für den gesamten Füllgrad des Extruders unabhängig vom punktuellen tatsächlichen Füllgrad.

Im folgenden Kapitel wird auf den allgemeinen Aufbau von gleichlaufenden Doppelschneckenextrudern, die Abläufe beim Aufschmelzen des Polymers, die Zuführung der Feststoffe (insbesondere der Cellulosefasern) und die Dispergierung von Füll- und Faserstoffen eingegangen.

2.2.2.1 Allgemeiner Aufbau

Der allgemeine Aufbau von gleichläufigen Doppelschneckenextrudern ist in der Regel gleich: Es gibt einen Hauptantrieb, eine Kupplung, ein Getriebe und ein Verfahrensteil [56]. Während Hauptantrieb, Kupplung und Getriebe vorrangig Einfluss auf die maximale Leistung des Extruders haben und nach der Konstruktion nicht mehr geändert werden können, ist das Verfahrensteil sehr wohl anpassbar und für spezielle Anwendungen modifizierbar. Abbildung 2-7 zeigt einen typischen Verfahrensaufbau für die Compoundierung von Naturfasern (vgl. [56] und [126]).

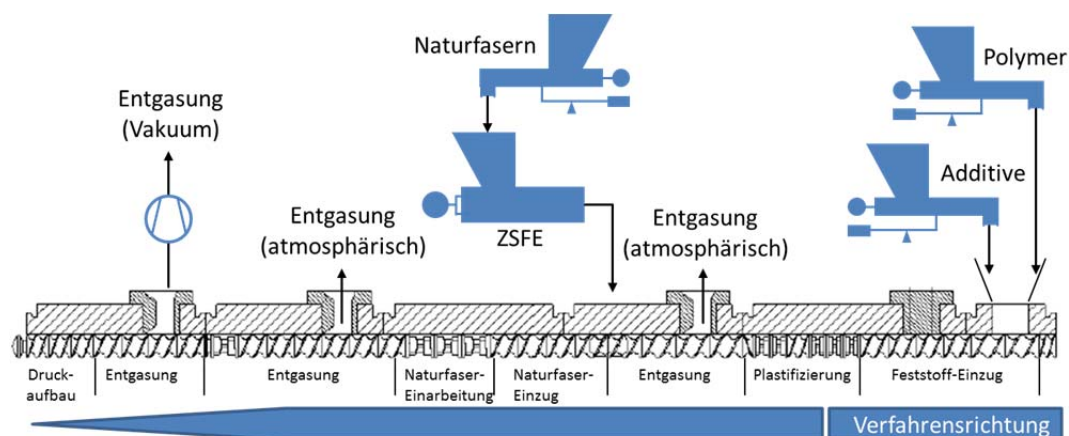


Abbildung 2-7: Verfahrensaufbau für die Herstellung von Naturfaser-Compounds (nach [56] und [126], angepasst)

Das für die Naturfaser-Compoundierung angepasste Verfahrensteil ist in verschiedene Zonen unterteilt. Die Matrixpolymere und gegebenenfalls notwendige Additive werden im vorderen Teil zugegeben. Im Feststoff-Einzug erfolgt die Förderung der noch unaufgeschmolzenen Granulate zur Plastifizierung. Hier findet das Aufschmelzen des Matrixpolymers statt (siehe Kapitel 2.2.2.3). Anschließend findet eine Entgasung der Schmelze statt, an dieser Stelle wird Luft aus dem Prozess ausgetragen, die durch den darauffolgenden Eintrag der Naturfasern (siehe Kapitel 2.2.2.4) über den Naturfaser-Einzug mitgeschleppt wird [56] [130]. Diese Entgasungszone wird auch als atmosphärische Rückwärtsentgasung bezeichnet, da sie sich in Verfahrensrichtung vor der Faserzuführung befindet. In der Naturfaser-Einarbeitungszone findet die Vermischung der Naturfasern mit der Polymerschmelze statt (siehe Kapitel 2.2.2.5), anschließend erfolgt wieder eine atmosphärische Entgasung, um eventuell in den Naturfasern vorhandene Feuchtigkeit auszutragen. In der nachfolgenden Vakuumentgasungszone wird die restliche Feuchtigkeit durch Herabsenkung des Umgebungsdrucks auf 30-50 mbar [130] ausgetragen. Der Druckaufbau vor der Rundloch-Düse sorgt für einen gleichmäßigen Austritt der Schmelze. Die einzelnen Zonen des Extruders können durch vorhandene Heiz- und Kühlkreisläufe unterschiedlich temperiert werden.

Die entstehenden Schmelzestränge werden in einem Wasserbad abgekühlt und im festen Zustand einem Granulator zugeführt, der aus den Strängen mittels rotieren-

der Messer Granulate herstellt.

2.2.2.2 Aufgaben und Besonderheiten der Schneckenelemente

Der modulare Aufbau des gleichläufigen Doppelschneckenextruders ermöglicht die freie Schneckenkonfiguration mittels verschiedener Schneckenelemente, die bei der Compoundierung bestimmte Aufgaben erfüllen.

Förder- und Gegenfördererelemente:

Die Fördererelemente dienen, wie der Name sagt, der Förderung von Schmelze (und Feststoff im Einzugsbereich) und dem Druckaufbau. Die Gegenfördererelemente werden zur Füllung des Schneckengangs oder zur Abstauung von Plastifizierungszonen (siehe Kapitel 2.2.2.3) eingesetzt und erhöhen die Verweilzeit des Materials [130]. Fördererelemente und Gegenfördererelemente unterscheiden sich durch die gegensätzliche Steigungsrichtung der Schneckengewinde. In Abbildung 2-8 (a) sind Fördererelemente mit Benennung der Steigung T dargestellt.

Die Steigung T wird in mm angegeben und gibt die benötigte Länge für eine komplette Umdrehung des Schneckenprofils an [121]. Je geringer die Steigung des Fördererelementes ausfällt, desto größer sind der Druckaufbau, die Verweilzeit und der Füllgrad [56].

Knetblöcke:

Der Einsatz von Knetblock-Elementen dient zum distributiven und dispersiven Mischen (siehe Kapitel 2.2.2.5). Die Knetblöcke bestehen aus einer bestimmten Anzahl Scheiben mit der Breite s und dem Versatzwinkel W [56]. Die Förder- und Mischleistung hängt von den geometrischen Größen der Knetblock-Elemente ab. Bei der Rotation eines Knetblock-Elementes im Extruder bildet sich zwischen der Flanke des Knetblocks und der Gehäusewand des Extruders durch die Reduzierung der Spaltbreite eine Keilströmung. Die Schmelze fließt zu beiden Seiten der Knetblock-Scheibe ab, wobei ein Teil der Schmelze in positive Förderrichtung des Extruders fließt, während der andere Teil der Schmelze in den benachbarten Schmelzekanal gelangt [56].

Bei den Knetblock-Elementen gibt es ebenfalls fördernde und gegenfördernde Elemente (siehe Abbildung 2-8 (b)) aber auch neutrale Elemente.

Die Variationen in den Knetblock-Geometrien wirken sich wie folgt aus:

- Je größer die Breite s des Knetblocks ist, desto weniger Schmelze fließt an den Seiten vorbei und desto höher sind die Druckspitzen [158].
- Je geringer die Breite s ist, desto weniger Scherwirkung entsteht im Knetspalt, desto höher ist die Förderwirkung und auch die Mischwirkung (Erhöhung der Teilströme) [119].

- Je größer der Versatzwinkel W ist, desto geringer ist die Förderwirkung des Knetblock-Elements, desto besser ist die Mischwirkung und desto größer ist die Verweilzeit [119].

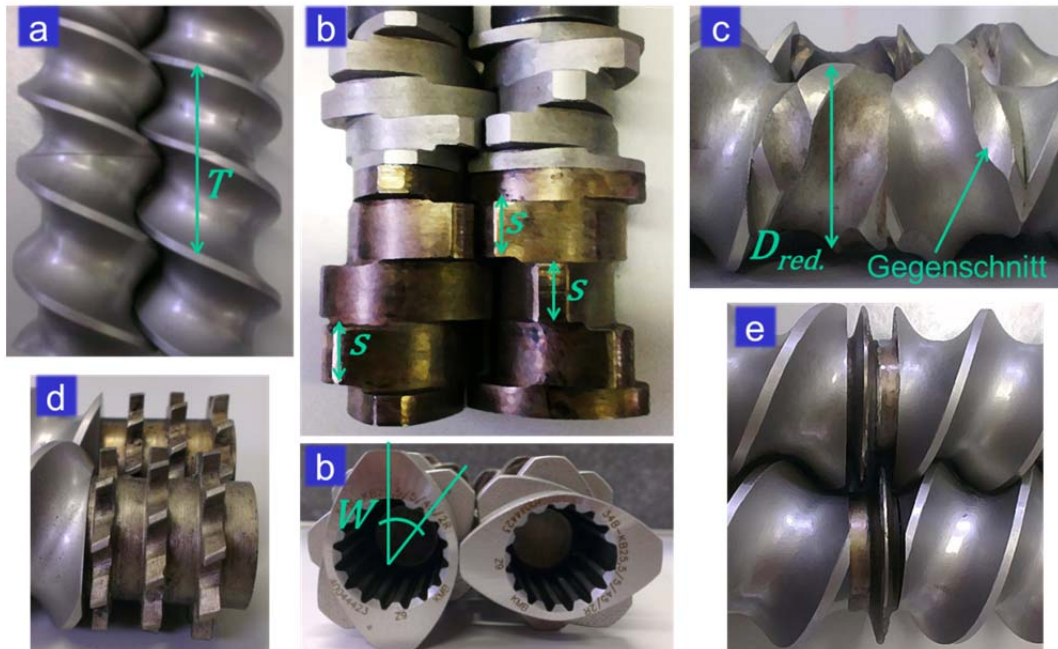


Abbildung 2-8: Darstellung verschiedener Schneckenelemente; a= Fördererlemente, b= Knetblock-Elemente, c= Multi-Process-Elemente, d= Zahnblockelemente, e= Stauscheiben

Bei Knetblöcken mit neutralem Förderverhalten ($W=90^\circ$) findet das Abfließen der Schmelze zu gleichen Teilen in positive und negative Förderrichtung statt. Sie weisen die maximal mögliche Menge an Schleppströmung auf [2]. Neutrale und rückfördernde Knetblöcke sind ein Strömungswiderstand im Schneckenprofil und müssen mit entsprechendem Druck überwunden werden. Diese Knetblock-Elemente sind deshalb im Prozess immer zu 100% gefüllt [130]. Bei rückfördernden Knetblockelementen verringert sich der stauende Charakter mit zunehmendem Versatzwinkel [2]. Die fördernden Knetblock-Elemente sind, sofern sie nicht unmittelbar vor einem Druckverbraucher eingesetzt sind, in der Regel nur teilgefüllt [130].

Multi-Process-Elemente (MPE):

MPE sind spezielle Elemente, die entwickelt wurden, um eine schonendere Compoundierung zu ermöglichen. Die MPE sind zum Mischen, Aufschmelzen und besonders zur Einarbeitung von Materialien geeignet, die empfindlich auf Scherung reagieren [126].

Die MPE besitzen im Vergleich zu den Knetblöcken und Fördererlementen kein dichtkämendes Profil [119], die Durchmesser der Schneckenelemente sind reduziert, so dass fördernde und gegenfördernde MPE direkt nebeneinander liegen. Dieser Umstand sowie die vorhandenen Durchbrüche (Gegenschnitte) in den Schneckenstegen sorgen für mehr Durchmischung der Schmelze [22] durch erhöhte

Dehnströmungen [153]. In Abbildung 2-8 (c) sind Multi-Process-Elemente zur Veranschaulichung dargestellt.

Die Mischwirkung der MPE kann durch die Variation der Außendurchmesser, dem Gegenschnittdurchmesser und der Mischkammeranzahl angepasst werden [126]. Der Einsatz von MPE ermöglicht im Vergleich zu den Knetblockelementen deutlich geringere Scherraten. Die relative Häufigkeit von hohen Scherraten nimmt ab, bei MPE liegen keine Scherraten oberhalb von 240 s^{-1} vor, bei Knetblöcken dagegen sind 15% (relative Häufigkeit) der erreichten Scherraten oberhalb von 270 s^{-1} [125].

Zahnblock-Elemente:

Zahnblock-Elemente werden zum Mischen verwendet und bestehen aus einer fördernden und gegenfördernden Seite [119]. Die einzelnen Zähne dieser Elemente teilen die Schmelze in viele verschiedene Ströme und sorgen so für eine außerordentlich gute Vermischung [130]. Die Zahnblock-Elemente bewirken beim Einsatz einen deutlichen Druckverbrauch [56], d.h. sie müssen durch vorherigen Druckaufbau im Extruder überwunden werden. In Abbildung 2-8 (d) ist ein Paar der Zahnblock-Elemente dargestellt.

Stauscheiben:

Stauscheiben (oder auch Blisterscheiben) sind Schneckenelemente, die den freien Querschnitt im Schneckengang extrem verringern. Dadurch wird der Schmelzefluss behindert und die Schmelze kann die Stauscheiben nur durch den engen Spalt zwischen Gehäusewand und Scheiben oder den Spalt zwischen den beiden Scheiben passieren [121]. In Abbildung 2-8 (e) sind zwei Stauscheiben dargestellt.

Die resultierende, sehr hohe Scherwirkung [51], entsteht durch die Schmelzeströmung in Prozessrichtung sowie durch die radiale Drehrichtung der Extruderschnecken [158]. Die Stauscheiben sind nicht selbstkämmend (selbstreinigend) und können auch als Schmelzedichtung verwendet werden. Durch den Einsatz erhöht sich die Verweilzeit [51].

2.2.2.3 Aufschmelzen des Matrixpolymers

Die Plastifizierung erfolgt zum größten Teil über die Zuführung von mechanischer Energie über die Schnecken [56]. Die Beheizung der Gehäusewand oberhalb des kristallinen Punkts des Polymers ist dennoch sinnvoll, um einen Schmelzefilm an der Wand zu erzeugen und den Verschleiß der Schneckenelemente und der Gehäusewand niedrig zu halten [56]. Weiterhin wird die Verweilzeit durch den Kontakt mit der heißen Gehäusewand erhöht [12].

Das Aufschmelzen der polymeren Matrix beginnt am Ort der ersten vollständigen Füllung des Extruder-Querschnitts [119]. Der Aufschmelzvorgang wird durch die

Verwendung von Knetblockelementen beschleunigt, bei einer ausschließlichen Verwendung von Förderelementen würde das Aufschmelzen erst kurz vor der Düse stattfinden [156]. Der Füllgrad ist für die Effizienz der Aufschmelzzone von großer Bedeutung [130]. Das Vorhandensein von gegenfördernden Knetblöcken erhöht den Füllgrad und verbessert den Aufschmelzprozess [156]. Die Knetblock-elemente sollten zusätzlich mit gegenfördernden Elementen abgestaut werden [130].

Um Probleme in den nachfolgenden Prozessschritten (z.B. Fasereinarbeitung) zu vermeiden, ist eine möglichst vollständige Plastifizierung des Polymers notwendig [158]. Das Aufschmelzen wird beeinflusst durch die Schneckendrehzahl, den Durchsatz, den Spezifischen und tatsächlichen Füllgrad sowie die Verweilzeit. Weiterhin sind die Aufschmelzenthalpie des Polymers und die Schmelzeviskosität von Bedeutung [119]. Für die Plastifizierung werden 80-90% der Antriebsleistung des Extrudermotors aufgewendet [51].

Bei der Plastifizierung mit Knetblöcken treten Druck- und Temperaturspitzen auf, die zur Schädigung der polymeren Matrix führen können [119]. Durch die Verwendung von MPE in Verbindung mit Knetblöcken kann die Schmelzetemperatur bei Polypropylen um ca. 15°C herabgesenkt werden, der Aufschmelzgrad wird dabei nur geringfügig verringert [126].

Da die Berechnung und Modellierung von Aufschmelzzonen nur ansatzweise möglich ist [56] [119], werden für die verwendeten Polymere eigens modifizierte Aufschmelzzonen untersucht und verwendet.

2.2.2.4 Zuführung der Naturfasern

Die Zuführung der Naturfasern kann über den Haupt-Feststoffeinzug oder über eine (oder mehrere) Seiteneinzüge stattfinden. Die Zugabe in Verfahrensrichtung nach der Aufschmelzzone hat zwei wesentliche Vorteile:

1. Die Fasern werden weniger eingekürzt, da sie weniger mechanischer Belastung ausgesetzt sind.
2. Temperaturempfindliche Stoffe werden geringerer thermischer Belastung ausgesetzt (abhängig von Zeit, Temperatur und Scherbeanspruchung).

Wenn das zugeführte Material ein hohes Volumen im Vergleich zum Matrixpolymer hat, kann dies zu einer deutlichen Absenkung der Schmelzetemperatur führen. Dadurch besteht die Möglichkeit, dass die Viskosität des Polymers soweit ansteigt, dass eine erhöhte Schädigung des Füllstoffes bzw. des Fasermaterials durch höhere Scherkräfte stattfindet.

Bei der Einarbeitung über eine Seitenfütterung müssen folgende Punkte beachtet werden [51]:

1. Am Zugabepunkt sind Schneckenelemente mit erhöhtem freiem Volumen zu verwenden.
2. Die zugeführte Luft muss aus dem Prozess ausgetragen werden können (Atmosphärische Rückwärts- und Vorwärtsgasung).
3. Nach der Zuführung muss eine ausreichende Verfahrenslänge zur Einarbeitung (Dispergierung) des Fasermaterials zur Verfügung stehen.

Die Zugabe über den Haupteinzug ist nur anteilig (bis ca. 10 wt.-%) möglich [119] und birgt gewisse Risiken. Wenn der Füllstoff in entsprechend hohem Anteil bzw. Volumen vorhanden ist, oder sich vom Polymeranteil absondert, können sich lokale Anhäufungen des Füllstoffes bilden. Diese Füllstoff-Anhäufungen werden in den Spalten der Knetblöcke in der Aufschmelzzone verdichtet und komprimiert. Durch diese Komprimierung bilden sich Agglomerate, die später nur noch sehr schwer aufgeschlossen werden können [2]. Eigene Versuche im Vorfeld haben ebenfalls gezeigt, dass sich bei Zugabe der Fasern über den Haupteinzug vermehrt Agglomerate bilden, die Verfärbung des Compounds deutlich zunimmt und das Drehmoment ansteigt.

2.2.2.5 Dispergierungszone

In der Dispergierungszone werden die Cellulosefasern in die Polymerschmelze eingearbeitet und mit der Schmelze vermischt. Die Anforderungen beim Mischen von Füllstoffen sind eine Kombination aus dispersiven und distributiven Vorgängen. Das disperse (zerteilende) Mischen umfasst das Aufbrechen von Agglomeraten bzw. das Entwirren von Faserbündeln. Das distributive (verteilende) Mischen ist das gleichmäßige Verteilen der Füllstoffe oder Fasern in der Kunststoffschmelze [151].

Im Idealfall der Dispergierung werden alle Agglomerate bzw. Faserbündel in ihre einzelnen Bestandteile zerteilt und anschließend gleichmäßig in der Schmelze verteilt.

Die Dispergierung verläuft in vier Schritten:

1. Einarbeitung des Füllstoffes (bzw. der Fasern) in die Schmelze
2. Benetzung des Füllstoffes (bzw. der Fasern) mit Schmelze
3. Aufbrechen der Agglomerate bzw. der Faserbündel
4. Stabilisierung der erhaltenen Dispersion

Das Zerteilen der Agglomerate bzw. Faserbündel ist der anspruchsvollste Schritt bei der Dispergierung. Die Verteilung der einzelnen Bestandteile ist vergleichsweise einfach zu bewerkstelligen [89].

Das disperse Mischverhalten ist durch die Zuführung hoher Scherraten zu erreichen [151], welche z.B. bei der Verwendung von Knetblöcken mit hoher Scheibenbreite erzielt werden.

Die distributive Mischung wird durch hohe Expansions- und Kompressionswechsel erreicht [151], was ebenfalls bei Knetblöcken der Fall ist, sowie auch beim Einsatz von Zahnblockelementen.

Die Agglomerierung bzw. Verflechtung der Cellulosefasern vor der Verarbeitung im Extruder ist von verschiedenen Faktoren abhängig. In verschiedenen Quellen wird berichtet, dass mit steigender spezifischer Oberfläche, also einer Verringerung der Partikelgröße, die Agglomerationsneigung zunimmt. Dieses Verhalten wird mit einer höheren spezifischen Oberflächenenergie und vermehrter Ausbildung von Wasserstoffbrückenbindungen erklärt [43] [68] [148]. Aus anderen Quellen kann wiederum entnommen werden, dass die Agglomerationsneigung mit zunehmender Faserlänge ansteigt [116] [150]. Mehrere Autoren berichten auch von einem Zusammenhang zwischen zunehmendem Fasergehalt und einer damit verbundenen erhöhten Agglomerationsbildung [66] [109] [122].

2.3 Rheologische Eigenschaften von Naturfaser-Compounds

2.3.1 Rheologie von thermoplastischen Polymeren

Die Rheologie beschreibt das Fließverhalten und die Formänderung von Stoffen [93]. Das Fließverhalten von Kunststoffschmelzen ist aufgrund des molekularen Aufbaus der Thermoplaste stark abhängig von der Schergeschwindigkeit $\dot{\gamma}$ und der Schubspannung τ [59], mit zunehmender Scherrate nimmt die Viskosität ab [42]. Die Einflüsse beim

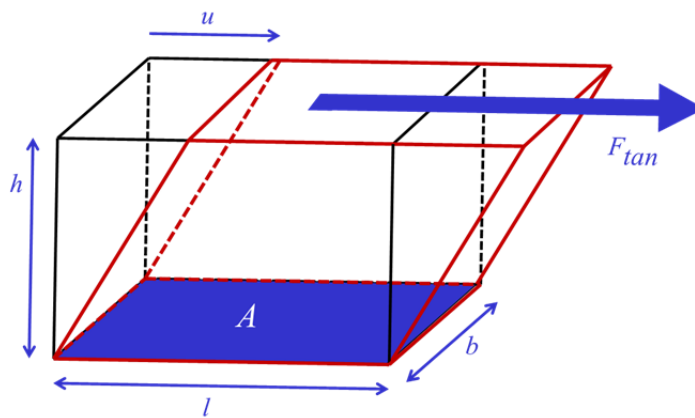


Abbildung 2-9: Zwei-Platten-Modell zur Darstellung des rheologischen Verhaltens

Fließen von Kunststoffschmelzen können relativ einfach anhand des Zwei-Platten-Modells verdeutlicht werden (siehe Abbildung 2-9). Zwei parallele Platten schließen die Kunststoffschmelze ein. Die untere Platte ist fest, die obere Platte wird um den Betrag u ausgelenkt. Für die Auslenkung ist die Tangentialkraft F_{tan} aufzubringen. Die Fläche der beiden Platten beträgt A [86]. Die Schergeschwindigkeit $\dot{\gamma}$ wird berechnet durch das Ausmaß der Auslenkung u über die Zeit t bezogen auf die Höhe h , siehe Gleichung 2-5.

$$\dot{\gamma} = \frac{du}{dt} \cdot \frac{1}{h} = \frac{v}{h} = [s^{-1}]$$

Gleichung 2-5

Die Extrusion findet im mittleren Scherratenbereich von 10^1 bis 10^3 s^{-1} statt, das

Spritzgießen im Bereich von 10^1 bis 10^4 s^{-1} [42].

Die Schubspannung τ wird berechnet durch die aufzubringende Tangentialkraft F_{tan} bezogen auf die Fläche A , siehe Gleichung 2-6.

$$\tau = \frac{F_{tan}}{A} = [Pa] \quad \text{Gleichung 2-6}$$

Die Scherviskosität η berechnet sich durch das Verhältnis von Schubspannung τ zu Scherrate $\dot{\gamma}$, siehe Gleichung 2-7.

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} = [Pa \cdot s] \quad \text{Gleichung 2-7}$$

Die Scherviskosität von thermoplastischen Kunststoffen ist abhängig von der Temperatur, dem Druck und der Zeit [59]. Weiterhin ist die Scherviskosität abhängig vom Molekulargewicht und von Zuschlagstoffen (Weichmacher oder Füllstoffe). Bei Erhöhung der Temperatur sinkt die Viskosität ab, bei Erhöhung des Drucks steigt sie an. Die Erhöhung des Molekulargewichts und die Zugabe von Füllstoffen bewirken eine Erhöhung der Viskosität. Durch den Zusatz von Weichmachern kann die Viskosität herabgesenkt werden [94].

Die Darstellung des Zusammenhangs zwischen Viskosität η und Scherrate $\dot{\gamma}$ und entsprechender Schubspannung τ erfolgt mit Hilfe von Fließ- und Viskositätskurven [42]. Bei der Viskosität wird zwischen scheinbarer und wahrer Viskosität unterschieden. Die scheinbare Viskosität ist abhängig von der Geometrie des Prüfaufbaus (z.B. MVR-Messung, siehe Kapitel 3.4.2) und deshalb nur untereinander vergleichbar, die wahre Viskosität ist unabhängig von der Düsengeometrie [93]. Um die wahre Viskosität zu erhalten, müssen die Rabinowitsch-Weißenberg-Korrektur (Berücksichtigung des strukturviskosen Fließens) und die Bagley-Korrektur (Berücksichtigung von Druckverlusten beim Kapillarenzufluss) durchgeführt werden [42].

2.3.2 Beeinflussung der Viskosität durch Naturfasern

Generell ist festzustellen, dass die Zugabe von Füllstoffen oder Fasern zu einer Erhöhung der Schmelzeviskosität führt. Daraus resultiert wiederum eine anspruchsvollere und schwieriger zu beherrschende Prozessführung. Laut LA MANTIA und MOREALE ist der Einfluss des Füllstoffanteils größer, als der Einfluss der Morphologie des Füllstoffes bzw. der Fasern [90]. Aus verschiedenen Arbeiten geht der generelle Zusammenhang zwischen Erhöhung des Naturfaseranteils und ansteigender Schmelzeviskosität hervor [6] [30] [31] [34] [64] [115] [148].

Darüber hinaus wurde das Fließverhalten von gefüllten Polymerschmelzen auch intensiver untersucht. HOCHSTEIN hat den Einfluss der Morphologie anhand von Glaskugeln und Glasfasern untersucht und festgestellt, dass die Viskosität mit zunehmender Faserlänge im Vergleich zu den Glaskugeln überproportional ansteigt [61].

Eigene Untersuchungen haben gezeigt, dass die Viskosität mit zunehmendem L/d-Verhältnis der Cellulosefasern bei einem Füllstoffgehalt von 20 wt.-% signifikant zunimmt [78]. Untersuchungen von CROWSON et al. haben ergeben, dass die Fasern bei höheren Scherraten stärker ausgerichtet sind, als bei niedrigeren Scherraten [29]. Dies führt dazu, dass die Viskositätsunterschiede zwischen ungefülltem und gefülltem Polymer bei höheren Scherraten verringert werden. Diesen Effekt beschreiben ebenfalls von AURICH et al. [6], DING et al. [31] und REUßMANN [117].

RAMZY et al. haben gezeigt, dass es bei hohen Scherraten bei der Herstellung von Fließspiralen im Spritzgussprozess zu einer Entmischung der Polymerschmelze kommt. Mit zunehmender Fließweglänge steigt zudem der Fasergehalt im Polymer punktuell an. Der Gesamtfasergehalt bleibt dabei jedoch gleich. Bei niedrigeren Einspritzgeschwindigkeiten ist dieser Effekt nicht erkennbar. Erklärt wird das Phänomen mit der Agglomerierung der Fasern, da mit zunehmender Fließweglänge ebenfalls der Agglomeratanteil steigt [116].

Die generelle Zunahme der Viskosität durch Hinzufügen von (Natur)-fasern zur Schmelze wird laut REUßMANN [117] mit einer immobilisierenden Wirkung der Fasern, die auch CROWSON et al. [29] beschrieben haben, erklärt. Nach REUßMANN kommen im speziellen Fall der Naturfasern zusätzlich die raue Faseroberfläche, die Verschlaufungsneigung und die Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Fasern bei hohen Füllgehalten viskositätserhöhend hinzu [117].

2.4 Spritzgießtechnische Verarbeitung der Naturfaser-Compounds

Zur Herstellung von komplexen Bauteilen aus thermoplastischen Kunststoffen wird eine Spritzgießmaschine benötigt. Die wesentlichen Vorteile bei der Nutzung der Spritzgießtechnik liegen in der vollautomatischen Herstellung und der geringen Nacharbeit der Bauteile [144].

Die Spritzgießmaschine besteht aus zwei wesentlichen Komponenten: Der Schließ- und der Spritzeinheit. Die Schließeinheit umfasst das Werkzeug, in das die Kunststoffschmelze eingespritzt wird. Die Schließeinheit öffnet und schließt das Werkzeug und hält es während des Einspritzens zusammen. Nach dem Abkühlen werden das Bauteil und der Anguss ausgeworfen. Die Spritzeinheit besteht aus einem beheizten Zylinder, in dessen Inneren sich eine kernprogressive Schnecke befindet. Diese Schnecke ist nach vorn und hinten horizontal verfahrbar und wirkt als Kolben zum Einspritzen der Schmelze [132].

Während eines Spritzgießzyklus laufen folgende Schritte ab:

1. Plastifizierung des Polymers
2. Ende der Plastifizierung
3. Schließen des Werkzeugs

4. Einspritzen ins Werkzeug
5. Nachdruck- und Abkühlzeit
6. Entformung des Bauteils und des Angusses

Die einzelnen Schritte werden jedoch nicht nacheinander durchlaufen, sondern können, wie z.B. die Plastifizierung und Abkühlung des Bauteils, gleichzeitig stattfinden [144].

Bei der Verarbeitung von thermoplastischen Kunststoffen ist zu beachten, dass die Kunststoffe innerhalb eines bestimmten Temperatur- und Zeitoptimums (Verarbeitungsfenster) verarbeitet werden müssen. Bei einer zu hohen Verweilzeit und zu hoher Temperatur besteht je nach Polymer die Gefahr, dass sich das Material zersetzt. Bei zu geringen Temperaturen kann der Kunststoff in der Spritzgießmaschine erstarren [42].

Für die spritzgießtechnische Verarbeitung von naturfaserverstärkten Kunststoffen müssen weitere Punkte beachtet werden. REUßMANN hat gezeigt, dass die Herstellung von großflächigen, komplexen Spritzgieß-Bauteilen aus PP mit 30 wt.-% Faseranteil möglich ist, wenn die Verarbeitungstemperatur unter 200°C, die Verweilzeit gering und der Staudruck niedrig gehalten werden. Außerdem sollten große Querschnitte zum Anspritzen und großvolumige Fließkanäle vorhanden sein [117]. Nach BAUR et al., die ein Regelwerk u.a. für das Spritzgießen von NFK erstellt haben, sind folgende Punkte zu beachten [11]:

- Vortrocknung der Compounds bei 50-105°C für 1,5 bis 4 Std. (Restfeuchte < 0,05 wt.-%)
- Massetemperatur zwischen 160-190°C, in Ausnahmefällen 200-210°C
- Werkzeugtemperatur 20-50°C (kleine Bauteile) bzw. 40-70°C (große Bauteile)
- Geringe Dosiergeschwindigkeiten für bessere Durchmischung der Schmelze
- Verwendung von großen Düsendurchmessern

AURICH empfiehlt die Einspritz-Volumenströme möglichst gering zu halten, um Verbrennungen der Naturfasern an der Fließfront der Schmelze zu vermeiden [5].

2.5 Statistische Versuchsplanung

Im Folgenden werden kurz einige Größen und Vorgehensweisen der statistischen Versuchsplanung erläutert, die dem Verständnis der Durchführung und Auswertung der in der Arbeit getätigten Versuchsreihen dienen sollen.

2.5.1 Allgemeines zu statistischer Versuchsplanung

Die statistische Versuchsplanung dient dazu, mit möglichst geringem Aufwand einen möglichst hohen Erkenntnisgewinn zu erlangen. Zu diesem Zweck wird von der sonstigen Vorgehensweise bei Versuchen, nur einen Parameter pro Versuch zu verändern, abgewichen [74]. Relevant bei

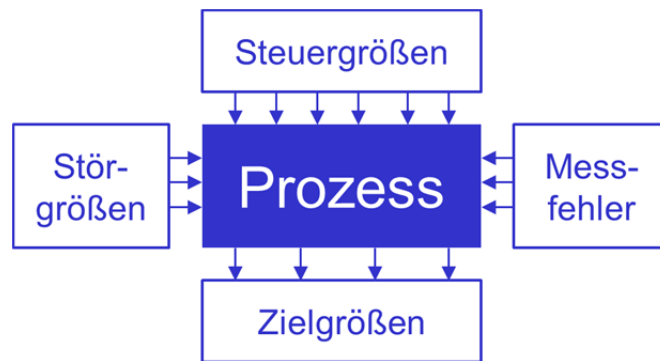


Abbildung 2-10: Schematisches Prozessmodell für die Versuchsplanung

der Planung der Versuche ist der Prozess, oder auch das System. Die Systemgrenzen müssen klar definiert sein. Der Prozess wird bestimmt von Stör- und Steuergrößen. Die Steuergrößen können gezielt eingestellt werden, während die Störgrößen unbekannt sind und/oder nicht beeinflusst werden können. Die Zielgrößen (oder auch Qualitätsmerkmale) sind von den Stör- und Steuergrößen abhängig [134]. Zusätzlich haben Messfehler beim Prozess Einfluss auf die Zielgrößen [155], siehe Abbildung 2-10. Alle Eingangsgrößen des Prozesses werden als Parameter bezeichnet, die Parameter, die im Versuchsplan verändert werden, heißen Faktoren. Die unterschiedlichen Einstellungen der Faktoren sind die Stufen [134].

Die Vorgehensweise bei der statistischen Versuchsplanung ist wie folgt [74]:

- Festlegung des Untersuchungsziels
- Festlegung der Faktoren und Zielgrößen
- Aufstellung des Versuchsplans
- Durchführung der Versuche (streng nach Versuchsplan)
- Auswertung und Interpretation der Ergebnisse

2.5.2 Statistische Auswertung

Hauptfaktoren und Wechselwirkungen

Bei der Auswertung der Versuche muss zwischen Hauptfaktoren und Wechselwirkungen unterschieden werden. Während die Hauptfaktoren einzeln Einfluss auf verschiedene Zielgrößen nehmen und unabhängig voneinander betrachtet werden können, verhält es sich mit den Wechselwirkungen anders. Bei Wechselwirkungen wird der Einfluss eines bestimmten Faktors immer von mindestens einem anderen Faktor und dessen Einstellungen beeinflusst. Das bedeutet, dieser Faktor kann nicht mehr einzeln betrachtet werden [134]. Bei der Auswertung wird folgendes Vorgehen vorgeschlagen [74]:

- Berechnung der Effekte von Faktoren und Wechselwirkungen
- Überprüfung dieser Effekte auf Signifikanz
 - o Kommen nur Hauptfaktoren vor, so können diese einzeln betrachtet und optimiert werden
 - o Bei vorhandenen Wechselwirkungen müssen die betroffenen Faktoren gemeinsam betrachtet werden, um die zur Optimierung der Zielgrößen am besten geeigneten Einstellungen zu finden

Wirkung von Faktorstufen

Bei den durchgeführten Untersuchungen werden verschiedene Faktoren in unterschiedliche Stufen (z.B. „hoch“ und „niedrig“) unterteilt. Die Bewertung der Auswirkung dieser Faktorstufen läuft folgendermaßen ab.

Aus den Ergebnissen aller Versuche mit unterschiedlichen Faktor- und Stufeneinstellungen wird der jeweilige Gesamtmittelwert gebildet. Des Weiteren folgt die Ermittlung der Mittelwerte für jede Stufeneinstellung eines Faktors. Die Abweichung dieses Wertes vom Gesamtmittelwert gibt die Wirkung der Faktorstufe an. Dieses Vorgehen wird auch als Mittelwertanalyse bezeichnet. Die Auswirkungen der jeweiligen Faktorstufen können in ein Diagramm eingetragen werden und auf diese Weise einen guten Überblick über die Verhältnismäßigkeiten der verschiedenen Faktorstufen geben [73].

Regressionsgleichung:

Zur tendenziellen Bewertung des Einflusses der Variation von Faktoren auf die Zielgrößen kann die Regression verwendet werden. Sie dient der Herstellung von Zusammenhängen zwischen quantitativen Größen [73]. Dabei wird mittels einer Gleichung angegeben, wie sich die Einstellungen eines Faktors auf die Zielgröße auswirken. Die generelle Schreibform einer Regressionsgleichung erfolgt nach Gleichung 2-8 [134]:

$$y_i = b_0 + b_1x_{i1} + b_2x_{i2} + \dots + b_nx_{in} + \varepsilon_i \quad \text{Gleichung 2-8}$$

Mit y_i = Zielgröße, b_0 = Konstante, b_n = Koeffizienten, x_n = Faktoren, ε_i = zufälliger Fehler

Der zufällige Fehler ε_i gibt den Teil des Regressionsmodells an, der nicht durch das Modell erklärt werden kann. Dieser Wert wird durch das Bestimmtheitsmaß ausgedrückt und berücksichtigt die allenfalls näherungsweise Anpassung der Modelle durch die Regression [73].

Die Regression wird auch als die Methode der kleinsten Fehlerquadrate bezeichnet, da bei der Regression die Summe der quadratischen Abweichungen zwischen gemessenem Wert und der Prognose des Regressionsmodells minimiert wird [134].

Während KLEIN [73] eine Inter- und Extrapolation durch die Anwendung der Regression erlaubt, wird bei SIEBERTZ et al. [134] ausdrücklich vor der Extrapolation mittels Regressionsgleichungen gewarnt, da außerhalb des untersuchten Messbereiches andere physikalische Wirkungen bestehen können, die die Ergebnisse entsprechend beeinflussen. In dieser Arbeit wird deshalb nur mit interpolierten Werten gearbeitet.

Bestimmtheitsmaß:

Das Bestimmtheitsmaß gibt Auskunft darüber, wie gut eine Regressionsgleichung bzw. ein -modell an die tatsächlich existierenden Messwerte angepasst ist. Das Bestimmtheitsmaß (engl. r-squared) kann durch folgende Gleichung 2-9 ausgedrückt werden [73]:

$$B = \frac{\sum_{i=1}^n (\hat{y}_i - \bar{y})^2}{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2} \quad \text{Gleichung 2-9}$$

Mit \hat{y}_i = Prognosewerte des Regressionsmodells, \bar{y} = Arithmetisches Mittel der Messwerte, y_i = Tatsächlich gemessene Werte

Das Bestimmtheitsmaß sagt aus, wie hoch die Anpassung des Modells ist und im Umkehrschluss ebenfalls, wie hoch der Wert des zufälligen Fehlers ε_i ist (siehe Gleichung 2-8).

Der Wert des Bestimmtheitsmaßes ist immer zwischen 0 und 100%, wobei ein Wert von 0% ein vollkommen unangepasstes Modell beschreibt und der Wert 100% ein Modell, bei dem jeder vorhergesagte Wert exakt dem Messwert entspricht. Für das Bestimmtheitsmaß ist keine allgemeingültige Güteskala vorhanden, ab welchem Wert ein Modell als ausreichend zu betrachten ist [73]. Für diese Arbeit wird als Grenzwert für ein ausreichendes Modell ein korrigiertes Bestimmtheitsmaß von 80% verwendet.

Das korrigierte Bestimmtheitsmaß B_{kor} berücksichtigt für die Berechnung zusätzlich die Anzahl der durchgeführten Messungen und die Anzahl der Parameter, die durch das Modell angepasst werden sollen. Die Berechnung des korrigierten Bestimmtheitsmaßes ist in Gleichung 2-10 angegeben [155]:

$$B_{kor} = 1 - \frac{n_M - 1}{FG} \cdot (1 - B) \quad \text{Gleichung 2-10}$$

Mit n_M = Anzahl der durchgeführten Messungen

Die Anzahl der Freiheitsgrade FG berechnet sich nach Gleichung 2-11:

$$FG = n_M - p_n \quad \text{Gleichung 2-11}$$

Mit p_n = Anzahl der Parameter, die durch das Modell angepasst wurden

Nach WEMBER sollte die korrigierte Form des Bestimmtheitsmaßes verwendet werden, da hierdurch der Anteil der Streuung besser eingeschätzt werden kann [155].

3 Material und Methoden

3.1 Verwendete Materialien

3.1.1 Polypropylen

Die Typenbezeichnung des verwendeten PP ist BH345MO, Hersteller des Materials ist die Borealis AG. Das BH345MO ist ein heterophasisches Copolymer, speziell für die Verwendung im Spritzgieß-Prozess angepasst und enthält u.a. Nukleierungs- und Entformungshilfsmittel [103].

Die Eigenschaften des verwendeten Polypropylens sind in Tabelle 3-1 dargestellt. Soweit es nicht anders dargestellt ist, handelt es sich um eigene Messergebnisse. Die Werte wurden analog zu den Angaben in Kapitel 3.4 ermittelt.

Tabelle 3-1: Eigenschaften des verwendeten PP-Typs BH345MO, in Klammern ist die Standardabweichung angegeben

Verhalten bei Biegebelastung	Biegefestigkeit [MPa]	Biegemodul [MPa]	Biegedehnung [%]
	35,6 (0,5)	1240 (14)	6,9 (0,2)
Verhalten bei Zugbelastung	Zugfestigkeit [MPa]	Zugmodul [MPa]	Zugdehnung [%]
	23,4 (0,2)	1290 (26)	5,3 (0,1)
Verhalten bei schlagartiger Beanspruchung	Schlagzähigkeit [kJ/m ²]		
	125,1 (0,8)		
Thermische Eigenschaften	Schmelzbereich [°C]	Glasübergangstemperatur [°C]	Wärmeformbeständigkeit [°C]
	165,6 - 170,5	-10°C ²	57,0 (0,1)
Rheologische Eigenschaften	MFR (190°C/5kg) [g/10min]	MVR (190°C/5kg) [cm ³ /10min]	Viskosität (190°C, 1000 s ⁻¹) [Pa*s]
	89,0 (1,5)	118,2 (2,1)	61
Farbwerte	L* = 69,3	a* = -0,71	b* = -3,68

Die Durchführung der Versuche erfolgt unter Verwendung der gleichen Materialcharge des PP.

² Angaben aus [88], S. 123

Bei der Herstellung der PP-Cellulosefaser-Compounds werden 3 wt.-% MSA-G-PP vom Typ „Scona TPPP 8112 FA“ von der Firma BYK-Chemie GmbH zugegeben. Der MSA-Anteil im Haftvermittler beträgt 1,4 wt.-% [104], wodurch der Gesamtanteil an MSA im Compound 0,042% beträgt. Der Anteil des Haftvermittlers wird anteilig vom PP-Gehalt abgezogen.

3.1.2 Polylactid

Das verwendete Polylactid ist das Ingeo™ Biopolymer 3251D von der Firma NatureWorks LLC. Das Material ist für die Spritzgießverwendung angepasst [102]. Die Eigenschaften des PLA 3251D sind in Tabelle 3-2 dargestellt, hierbei handelt es sich, mit Ausnahme der Farbwerte, um eigene Messergebnisse. Die Werte wurden analog zu den Angaben in Kapitel 3.4 ermittelt.

Tabelle 3-2: Eigenschaften des verwendeten PLA-Typs 3251D, in Klammern ist die Standardabweichung angegeben

Verhalten bei Biegebelastung	Biegefestigkeit [MPa]	Biegemodul [MPa]	Biegedehnung [%]
	112,0 (2,0)	3747 (39)	3,9 (0,2)
Verhalten bei Zugbelastung	Zugfestigkeit [MPa]	Zugmodul [MPa]	Zugdehnung [%]
	71,2 (0,2)	3630 (58)	3,2 (0,1)
Verhalten bei schlagartiger Beanspruchung	Schlagzähigkeit [kJ/m ²]		
	19,6 (1,5)		
Thermische Eigenschaften	Schmelzbereich [°C]	Glasübergangstemperatur [°C]	Wärmeformbeständigkeit [°C]
	164,3 – 175,7	60,5	53,2 (0,2)
Rheologische Eigenschaften	MFR (190°C/2,16kg) [g/10min]	MVR (190°C/5kg) [cm ³ /10min]	Viskosität (190°C, 1000 s ⁻¹) [Pa*s]
	39,0 (0,1)	34,9 (0,1)	152
Farbwerte³	L* = 90,6	a* = -0,99	b* = -0,50

Die Durchführung der Versuche erfolgt unter Verwendung der gleichen Materialcharge des PLA.

³ Angaben aus [4], Seite 842

3.1.3 Verwendete Cellulosefasertypen

Bei den verwendeten Cellulosefasertypen (CFT) handelt es sich um Materialien der Firma J. Rettenmaier & Söhne GmbH+Co.KG. Es sind industriell verfügbare Cellulosefasertypen, die teilweise zur Einstellung der mittleren Faserlänge oder der Faserlängenverteilung vermischt wurden. In Tabelle 3-3 ist eine Übersicht der verwendeten Cellulosefasertypen dargestellt, die weiteren Eigenschaften wie Länge, Durchmesser und L/d-Verhältnisse sind in Abbildung 3-1 bis Abbildung 3-3 aufgeführt.

Tabelle 3-3: Übersicht der verwendeten Cellulosefasertypen

Bezeichnung	Herkunft (Soft- oder Hardwood)	Faserlänge (kurz/ lang)	Aspect Ratio- Verteilung (eng/ weit)	Form (faseriger Füllstoff/ Parti- kel/ Faser)	Schüttdichte [kg/m³]
B600	Hardwood	kurz	eng	faseriger Füllstoff	212,9
BE600-30 Mix (BE-Mix)	Hardwood	kurz	weit	faseriger Füllstoff	252,7
BC200	Hardwood	kurz	weit	faseriger Füllstoff	126,1
BC1000 (BC1K)	Hardwood	lang	weit	Faser	64,6
BC1000 Mix (BC1K-Mix)	Hardwood	lang	eng	Faser	70,5
P350	Softwood	kurz	eng	Partikel	405,6
FDY600	Softwood	kurz	eng	faseriger Füllstoff	239,2
FiF400	Softwood	lang	weit	Faser	55,5

3.1.4 Charakterisierung der Cellulosefasertypen

Im Vorfeld erfolgte mittels optischer Vermessung mit einem hochauflösenden Dia-Scanner und einer entsprechenden Auswertungs-Software (Fibreshape, Firma IST AG) eine Analyse der verwendeten Cellulosefasertypen. Die Fasern wurden vor der Vermessung in bi-dest. Wasser dispergiert und danach auf einem Diaglas verteilt und unter einer Staubabdeckung getrocknet. Nach der Trocknung wurden die Cellulosefasern mit einem zweiten Diaglas bedeckt und fixiert. Für jede Fasertypen erfolgte

ten vier Präparationen. Die Ergebnisse werden als Boxplot-Diagramme⁴ dargestellt. Die Werte der Faserlängen- und Faserdicken-Bestimmung sind in Abbildung 3-1 und Abbildung 3-2 aufgeführt. In

Abbildung 3-3 sind zusätzlich die Aspect Ratio-Werte der Cellulosefasertypen dargestellt. Die Einteilung der Cellulosefasertypen erfolgt u. a. nach ihrer mittleren Faserlänge. Die Cellulosefasertypen mit einer mittleren Länge unter 100µm werden als faserige Füllstoffe eingeteilt (B600, BE600-30Mix, BC200, FDY600). Die CFT mit einer mittleren Länge >100µm werden als Fasern klassiert. Das P350 wird als Partikel bezeichnet, da es sich hierbei um eine CFT handelt, die im Vorfeld komprimiert wurde, um die Schüttdichte zu erhöhen und somit die Verarbeitung zu verbessern. Das P350 zeichnet sich zudem durch den niedrigsten Aspect Ratio aus.

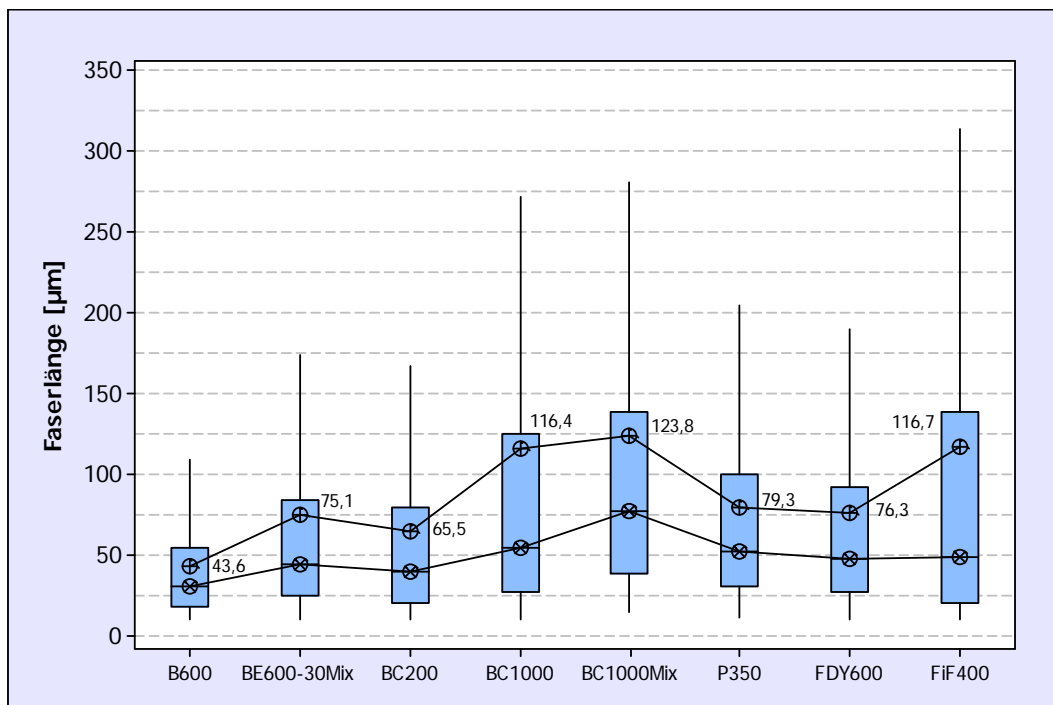


Abbildung 3-1: Gegenüberstellung der gemessenen Faserlängen [µm] der untersuchten Cellulosefasertypen; der Zahlenwert gibt jeweils die mittlere Faserlänge an; ⊕= Mittelwert; ⊗= Medianwert

⁴ In den Boxplot-Diagrammen sind innerhalb der Box 50% der Messwerte enthalten, innerhalb der Whisker befinden sich 75% der gemessenen Werte. Das Plussymbol markiert den arithmetischen Mittelwert und das Kreuzsymbol das zahlenmäßige Mittel, also den Medianwert.

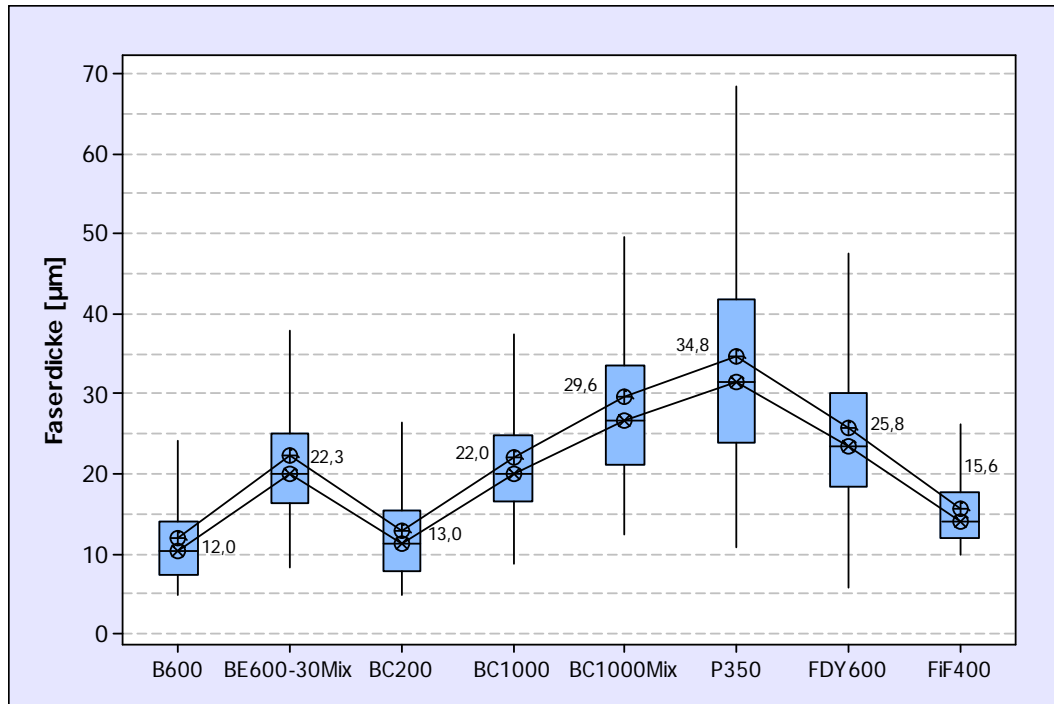


Abbildung 3-2: Gegenüberstellung der gemessenen Faserdicken [µm] der untersuchten Cellulosefasertypen; der Zahlenwert gibt jeweils die mittlere Faserdicke an; ⊕= Mittelwert; ⊗= Medianwert

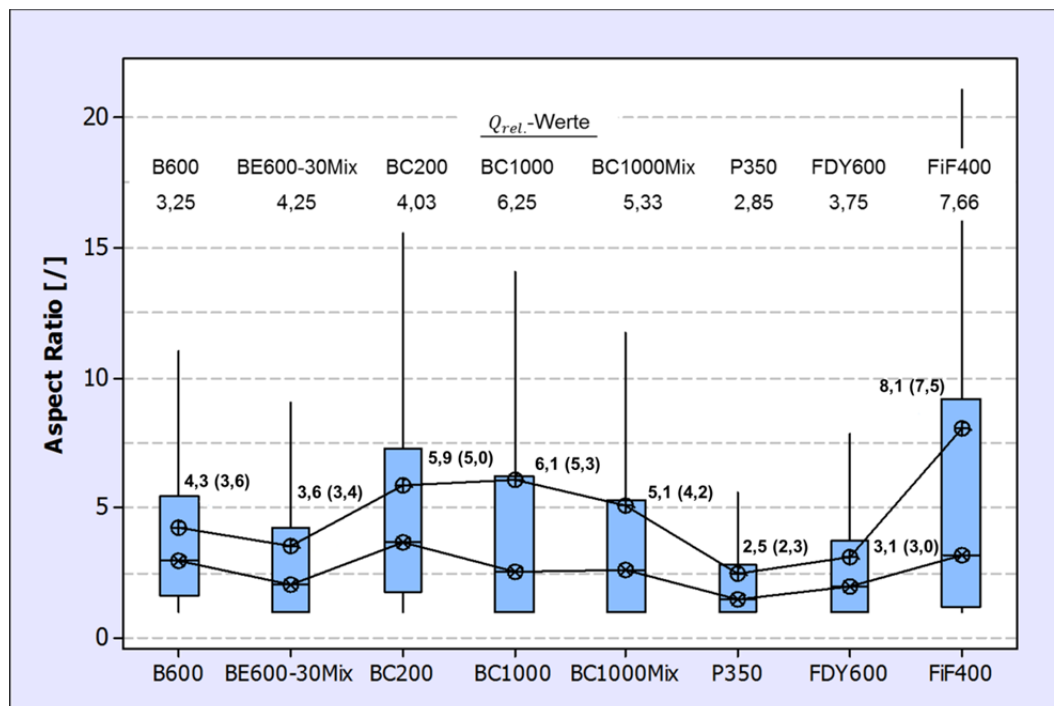


Abbildung 3-3: Gegenüberstellung der berechneten Aspect Ratio-Werte (L/d-Verhältnis) [°] der untersuchten Cellulosefasertypen; der Zahlenwert gibt jeweils den mittleren Aspect Ratio an, der Wert in Klammern gibt den berechneten Mittelwert aus Abb. 3-1 und Abb. 3-2 an; ⊕= Mittelwert; ⊗= Medianwert, Angabe der Q_{rel.}-Werte im oberen Bereich

Die Cellulosefasertypen lassen sich anhand der Aspect Ratio (AR)-Werte auch in zwei weitere Klassen einteilen: $AR \leq 5$ und $AR > 5$. Bemerkenswert bei der Betrachtung der AR-Werte sind der relativ hohe Wert des BC200, der aufgrund der ver-

gleichsweise geringen Dicke der Fasern zustande kommt, und der sehr hohe AR-Wert des FiF400-Materials. Das FiF400 besitzt eine relativ hohe mittlere Faserlänge und eine eng verteilte geringe Faserdicke. Das P350 weist einen bereits erwähnten geringen AR-Wert auf, dieser ist bedingt durch die hohe Faserdicke, welche wiederum auf die vorherige Komprimierung zurückzuführen ist. Das P350-Material wird durch die Komprimierung von einzelnen Fasern hergestellt. Dabei werden folglich auch größere Faserdicken erzielt, die Komprimierung sorgt für eine höhere Schüttdichte (siehe Tabelle 3-3) und somit auch für eine bessere Dosierbarkeit bei der Extrusion. Die Einteilung der Aspect Ratio-Verteilung in eng und weit wird anhand des Wertes $Q_{rel.}$ festgemacht, der nach Gleichung 3-1 bestimmt wird:

$$Q_{rel.} = \frac{Q_3}{Q_1} = [] \quad \text{Gleichung 3-1}$$

Mit Q_1 = unteres Quartil, 25% der Messwerte sind $\leq Q_1$

Q_3 = oberes Quartil, 75% der Messwerte sind $\leq Q_3$

Der Wert $Q_{rel.}$ soll einen Anhaltspunkt für die Verteilung des Aspect Ratio-Wertes für die Cellulosefasertypen geben. Je breiter die Verteilung der Fasern ist, desto ungleichmäßiger ist die Zusammensetzung des Faser-Gemisches. Diese Kenngröße kann demnach auch einen Einfluss auf die Compouneigenschaften haben. Für die faserigen Füllstoffe und die Partikel soll gelten: $Q_{rel.} \leq 4$ = eng verteilt, $Q_{rel.} > 4$ = weit verteilt. Für die Fasern soll gelten: $Q_{rel.} \leq 5,5$ = eng verteilt, $Q_{rel.} > 5,5$ = weit verteilt.

In Abbildung 3-4 sind REM-Aufnahmen der verschiedenen Cellulosefasertypen als Übersicht dargestellt. Hier sind sehr gut die unterschiedlichen morphologischen Eigenschaften der Fasertypen zu erkennen. Die B600-Fasern sind relativ kurz, haben ein geringes L/d-Verhältnis und weisen partikel- bis faserförmige Bestandteile auf. Die BE-Mix-Fasern sind vom Aussehen her ähnlich zu den B600-Fasern, das L/d-Verhältnis ist jedoch kleiner. Bei den BC200-Fasern ist die geringe Dicke der Fasern bei einer gleichzeitig relativ hohen Faserlänge auffällig. Die BC1000-Fasern sind vergleichsweise lang, in dem Gemisch sind allerdings auch kürzere Bestandteile enthalten. Bei der Betrachtung der BC1K-Mix-Fasertypen fällt auf, dass sowohl lange Bestandteile wie bei den BC1000-Fasern enthalten sind, aber Partikel mit einem deutlich geringeren L/d-Verhältnis. Die P350-Type enthält sehr partikelähnliche Bestandteile, die im Vorfeld komprimiert wurden. Die FDY600-Fasertypen enthält sowohl kurze faserige Bestandteile als auch partikelähnliche Komponenten. Bei der FiF400-Faser ist sehr gut die Verdrillung der längeren Fasern zu erkennen, die für eine stärkere Verhakung der Einzelfasern sorgt.

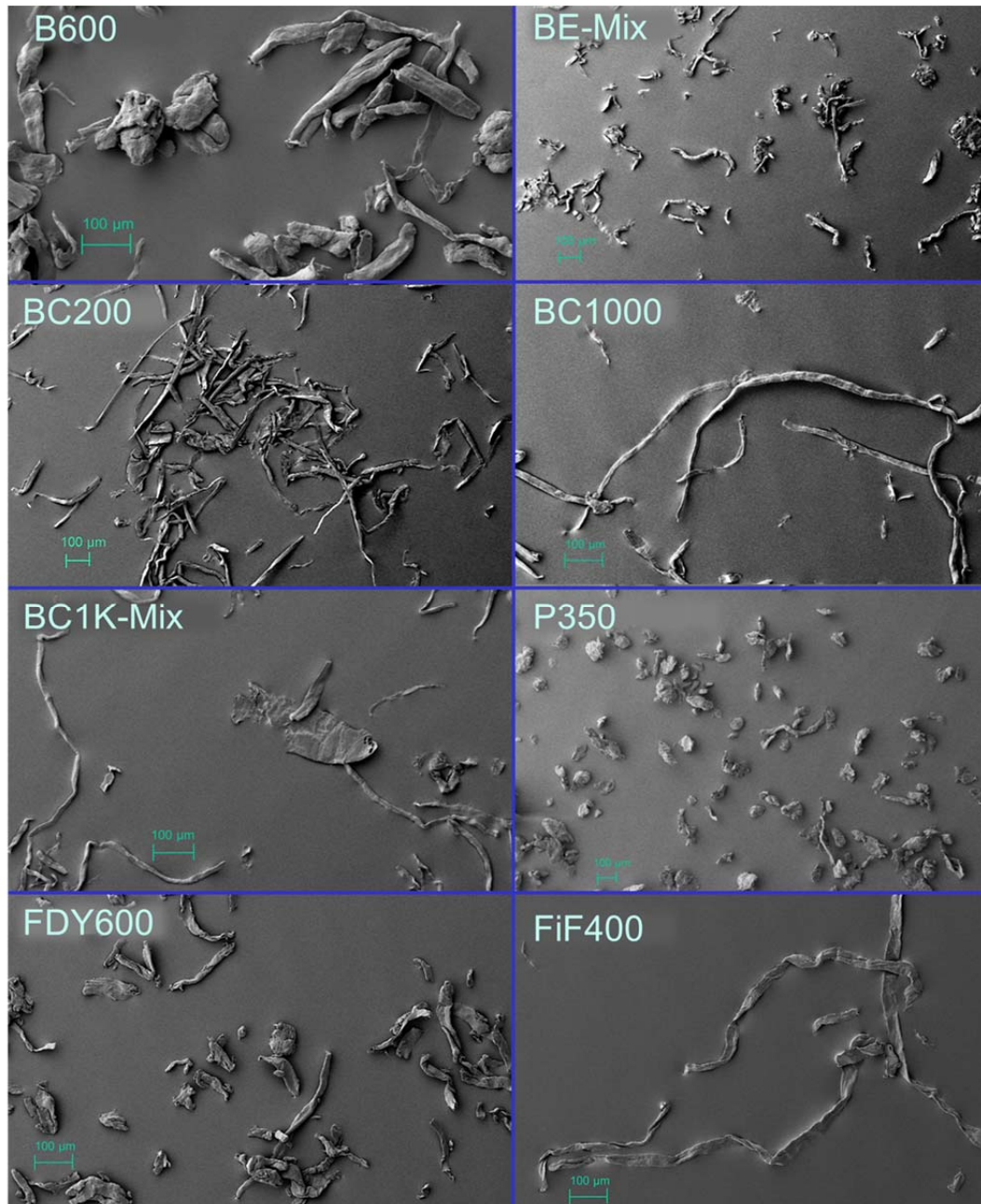


Abbildung 3-4: REM-Aufnahmen der Cellulosefasertypen in der Übersicht

3.2 Herstellung der Cellulosefaser-Compounds

Die Herstellung der Cellulosefaser-Compounds erfolgt mit einem gleichläufigen Doppelschneckenextruder vom Typ ZE34 Basic der Firma Krauss Maffei Berstorff GmbH. Der Schneckendurchmesser beträgt 34 mm, das D_a/D_i -Verhältnis 1,55 und die Gangtiefe 6,1 mm. Die Verfahrenslänge beträgt 46D, dies entspricht 1564 mm. Die Dosierung der Materialien erfolgt gravimetrisch. Der verwendete Verfahrensaufbau ist analog der Beschreibung in Kapitel 2.2.2.1, die Erläuterung evtl. Änderungen erfolgt detailliert je Einzelfall.

Nach der Compoundierung werden mithilfe einer 4-Lochdüse (Durchmesser=3,5 mm, Länge=12 mm) Schmelzestränge erzeugt, welche in einem Wasserbad abge-

kühlt und anschließend mit einem Stranggranulator vom Typ PRIMO 120E der Firma Automatik auf eine Länge von 3 mm zerkleinert werden.

Die Trocknung der Cellulosefasern vor der Verarbeitung erfolgt mit einem Umluft-trockenschrank der Firma Keller Ihne+Tesch vom Typ TYRUS 15 bei einer Temperatur von 100°C. Die Fasern werden bis zu einem Feuchtegehalt von 0,1 wt.-% getrocknet. Die Befeuchtung der Fasern auf 10,0 bzw. 15,0 wt.-% erfolgt durch Besprühen mit bi-dest. Wasser. Der Feuchtegehalt wird im Vorfeld ermittelt und die Zugabemenge an bi-dest. Wasser rechnerisch bestimmt. Das Wasser wird unter Mischen zugegeben und die Fasern in einem geschlossenen Behälter über Nacht gelagert, so dass sich ein Feuchtigkeitsgleichgewicht einstellen kann. Die Feuchtigkeit der Fasern wird anschließend kontrolliert. Die Messung der Faserfeuchte erfolgt mit einem Feuchtigkeitsanalysegerät vom Typ „MA150“ der Firma Sartorius.

3.3 Herstellung der Normprüfkörper

Die Herstellung der Normprüfkörper vom Typ 1A nach DIN EN ISO 527 erfolgt auf einer elektrischen Spritzgießmaschine vom Typ „KM 50-180 AX“ der Firma Krauss Maffei Technologies. Das verwendete Werkzeug verfügt über zwei Kavitäten. Die Materialien werden vor dem Verarbeiten bei 80°C in einem Trockenluft-Trockner für mindestens 12 Stunden getrocknet.

Die Spritzgießparameter für die Verarbeitung der PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds sind in Tabelle 3-4 aufgeführt.

Tabelle 3-4: Spritzgießparameter bei der Herstellung der Normprüfkörper 1A

Parameter	PP-Cellulosefaser-Compounds	PLA-Cellulosefaser-Compounds
Einspritzgeschwindigkeit [mm/s]	30-35	18-20
Einspritzdruck [bar]	500-550	850-860
Temperaturen [°C]:		
Einzug/Zone 1/Zone 11	30/150/210	30/175/190
Werkzeug	20	20
Kühlzeit [s]	20	26
Zykluszeit [s]	48	60

3.4 Materialcharakterisierung

3.4.1 Mechanische und thermomechanische Kennwerte

Die Messung dieser Kennwerte erfolgt jeweils 7 Tage nach Spritzguss der Normprüfkörper, um den Einfluss der Lagerung zu minimieren. Die Prüfkörper werden vor der Prüfung bei 23°C und 50% r.H. gelagert. Die Prüfungen finden in einem klimatisierten Raum unter gleichen Bedingungen (23°C, 50% r.H.) statt.

3.4.1.1 Zugprüfung (DIN EN ISO 527-2)

Die Zugprüfung erfolgt nach DIN EN ISO 527-2. Die Normprüfkörper vom Typ 1A werden mithilfe einer Universalprüfmaschine vom Typ Z020 der Firma Zwick/Roell geprüft. Die Ermittlung des Zugmoduls [MPa] geschieht mit einem Feindehnungsaufnehmer bei einer Prüfungsgeschwindigkeit von 1 mm/min, die Messung der Zugfestigkeit [MPa] und Zugdehnung [%] erfolgt bei 50 mm/min.

3.4.1.2 Biegeprüfung (DIN EN ISO 178)

Die Biegeprüfung erfolgt nach DIN EN ISO 178. Die Prüfungsgeschwindigkeit beträgt 2 mm/min, die Stützweite ist 64 mm. Somit ergibt sich bei der Messung ein L/d-Verhältnis in Höhe von 16. Die ermittelten Werte sind der Biegemodul [MPa], die Biegefestigkeit [MPa] und die Biegedehnung [%]. Für die Prüfung werden auf 80 mm Länge gekürzte Normprüfkörper des Typs 1A verwendet. Die Messung erfolgt mit einer Prüfmaschine vom Typ „Z2,5 TN zwicki“ der Firma Zwick/Roell.

3.4.1.3 Charpy-Schlagzähigkeit (DIN EN ISO 179/1eU)

Die Ermittlung der Charpy-Schlagzähigkeit [kJ/m²] wird nach DIN EN ISO 179/1eU mit einem Pendelschlagwerk vom Typ „B5102E“ der Firma Zwick/Roell durchgeführt. Die Stützweite beträgt 62 mm, der Aufschlag erfolgt seitlich (engl. edgewise) mit einem 5-Joule-Pendel, die Prüfkörper sind ungekerbt.

3.4.1.4 Wärmeformbeständigkeit (ISO 75-A)

Die Wärmeformbeständigkeit (Heat Deflection Temperature, HDT-A) wird mit einem „Basic-HDT/Vicat“-Gerät der Firma Coesfeld durchgeführt. Die Messung erfolgt analog der ISO 75-A mit einer Starttemperatur von 23°C und einer Aufheizrate von 120 K/h. Die Belastung bei der Messung beträgt 1,8 MPa. Das Ergebnis der Messung ist der HDT/A-Wert [°C].

3.4.2 Rheologische Kennwerte

Die Materialien werden vor der Ermittlung der rheologischen Kennwerte für eine Dauer von mindestens 12 Stunden bei 80°C in einem Trockner vom Typ MDE 40-0 der Firma Motan getrocknet. Bei der Trocknung der PLA-CF-Compounds muss hinsichtlich der Probenfeuchtigkeit gesondert verfahren werden (siehe unten).

3.4.2.1 Melt Flow Rate bzw. Melt Volume Rate (DIN EN ISO 1133B)

Die Ermittlung des Melt Flow Rate (MFR) [g/10min] und des Melt Volume Rate (MVR) [cm³/10min] werden mit einem Messgerät vom Typ „MFlow“ der Firma Zwick/Roell durchgeführt. Die Prüfung erfolgt analog der DIN EN ISO 1133B. Für die Ermittlung der MFR- und MVR-Werte der PP-Compounds erfolgen die Messungen mit einer Belastung in Höhe von 5 kg bei 190°C, für die PLA-Compounds erfolgen sie mit einer Belastung in Höhe von 2,16 kg bei 190°C.

Bei den PLA-Compounds muss zusätzlich der Wassergehalt der Proben vor der Prüfung gemessen werden, da dieser einen erheblichen Einfluss auf die MFR- und MVR-Werte ausübt. Die Messung des Wassergehaltes der Proben erfolgt mit einem Messgerät vom Typ „Aquatrac+“ der Firma Brabender Messtechnik. Eigene Versuche haben gezeigt, dass der Wassergehalt einen linearen Einfluss auf den MFR- und MVR-Wert hat, so dass bei den PLA-Compounds pro Material die MFR- und MVR-Werte bei unterschiedlichen Wassergehalten (niedrig und hoch) gemessen und bei einem interpolierten Vergleichswassergehalt angegeben werden. Dieser Vergleichswassergehalt liegt je nach Prüfreihe bei 0,1 bzw. 0,15 wt.-%. Die Werte werden in den Diagrammen zusätzlich angegeben.

3.4.2.2 Viskositätskurven (DIN 54811-A)

Die Bestimmung der Viskosität in Abhängigkeit der Scherrate erfolgt mit einem Hochdruck-Kapillarrheometer vom Typ „Rheograph 25“ der Firma Göttfert nach DIN 54811-A. Für die Messungen werden zwei unterschiedlich lange Kapillaren mit identischem Durchmesser verwendet ($d = 1 \text{ mm}$; $L_1 = 20 \text{ mm}$, $L_2 = 0,2 \text{ mm}$). Die Messungen erfolgen bei 190°C bei Stempelgeschwindigkeiten von 0,32, 0,48, 0,64, 1,28, 2,4, 3,0 und 4,5 mm/s. Auf Grundlage der Daten kann eine Bagley-Korrektur durchgeführt werden, die die Einlaufdruckverluste vor der Düse in die Korrektur einbezieht. Bei zusätzlicher Durchführung der Rabinowitsch-Weissenberg-Korrektur können die realen Viskositätswerte ermittelt werden.

Bei der Messung der Viskosität der PLA-Cellulosefaser-Compounds müssen ebenfalls vergleichende Messungen bei unterschiedlichen Wassergehalten durchgeführt werden. Auch hier kann anschließend die Viskosität bei einem Vergleichswassergehalt angegeben werden. Bei den Viskositätsmessungen liegt dieser Wert bei 0,25 wt.-%.

3.4.3 Sonstige Materialcharakterisierung

3.4.3.1 Messung der Farbwerte (DIN 5033)

Die Messung der Farbe analog der DIN 5033 erfolgt mit einem Farb/Glanzmessgerät vom Typ „spectro guide sphere/gloss“ der Firma BYK Gardner. Die Messungen werden mit der Lichtart D₆₅ und einem 10°-Beobachterwinkel durchgeführt. Das Ergebnis der Messung sind die L*, a* und b*-Werte (siehe Abbildung 3-5) [83]. Für die Auswertungen dienen jedoch ausschließlich die L*- und b*-Werte verwendet, da die eventuelle Veränderung des a*-Wertes für die Auswertungen keine Relevanz besitzt.

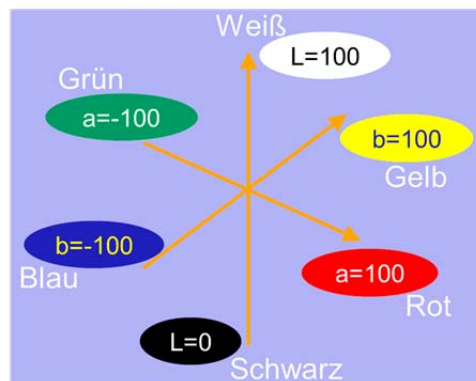


Abbildung 3-5: Darstellung der L*a*b*-Werte mit den dazugehörigen Farben

Die Messung der Farbe erfolgt an der Oberfläche eigens hergestellter Schmelze-Pressplatten, die direkt nach dem Compoundieren aus der heißen Schmelze geformt und anschließend abgekühlt werden. Diese Platten haben Abmaße von ca. 140 x 100 mm und Dicken von 2-5 mm.

3.4.3.2 Bestimmung der Faser-Agglomerate

Die Bestimmung der Faseragglomerate erfolgt mit einem Hochdruck-Kapillarrheometer vom Typ „Rheograph 25“ der Firma Göttfert. Hierfür findet lediglich ein Messkanal mit der Kapillare (L₁= 20 mm, d= 1 mm) Verwendung. Die Prüfungsgeschwindigkeit wird bei 0,2 mm/min gleich gehalten, so dass die Scherrate ebenfalls gleich bleibt. Während der Messung wird der Druck [bar] vor der Kapillare gemessen, bei evtl. vorhandenen Agglomeraten steigt dieser Druck an, um anschließend (nach Austritt des Agglomerates aus der Düse) wieder auf den ursprünglichen Wert abzufallen. Als Vergleichswert für die einzelnen hergestellten Cellulosefaser-Compounds dient das Druckverhältnis p_{rel} [/], ermittelt nach Gleichung 3-2.

$$p_{rel} = \frac{p_{max}}{p_{min}} = [/] \quad \text{Gleichung 3-2}$$

Mit p_{max} = Maximaler Druck [bar] während der Messung

p_{min} = Minimaler Druck [bar] während der Messung

Vor der Bestimmung der Faser-Agglomerate werden die Cellulosefaser-Compounds analog zur Viskositätsmessung bei 80°C für mindestens 12 Stunden getrocknet. Aufgrund der relativen Messung der Druckschwankung ist eine vergleichende Messung der PLA-Cellulosefaser-Compounds bei unterschiedlichen Wassergehalten nicht erforderlich.

3.4.3.3 Gelpermeations-Chromatographie-Messungen

Die Bestimmung der Molmassenverteilung des PLA erfolgt mittels Gelpermeations-Chromatographie (GPC). Aufgrund der guten Löslichkeit von PLA in Tetrahydrofuran (THF) [47] wird das PLA in einer Konzentration von 2500 ppm in THF gelöst und für 24h stehen gelassen um eine vollständige Lösung zu gewährleisten. Für die Entfernung des Faseranteils aus der Lösung, werden die Proben durch einen PTFE-Filter mit einer Porengröße von 0,2 µm filtriert.

Als Kalibrationsstandard dient ein eng verteiltes Polystyrol (PS), gelöst in THF. Die Messung ist demnach eine relative Ermittlung der Molmassenverteilung im Vergleich zum PS-Standard. Von jedem Material wird eine Doppelbestimmung durchgeführt, als Referenzmaterial wird natives PLA 3251D verwendet.

Die Berechnung der mittels GPC-Messung erhaltenen Werte findet anhand der folgenden Gleichung 3-3 bis Gleichung 3-5 statt (vgl. [42]).

Zahlenmittel des Molekulargewichts:

$$\bar{M}_n = \frac{\sum_i n_i \cdot M_i}{\sum_i n_i} \quad \text{Gleichung 3-3}$$

Gewichtsmittel des Molekulargewichts:

$$\bar{M}_w = \frac{\sum_i m_i \cdot M_i}{\sum_i m_i} \quad \text{Gleichung 3-4}$$

Polydispersität:

$$PD = \frac{\bar{M}_w}{\bar{M}_n} \quad \text{Gleichung 3-5}$$

Mit M_i = Molekulargewicht der einzelnen Fraktion

n_i = Anzahl der Moleküle in der jeweiligen Fraktion

m_i = Anzahl der Moleküle einer Fraktion multipliziert mit dem Molekulargewicht

Die Polydispersität (PD) ist ein Wert für die Verteilungsbreite eines Polymers.

4 Methodische Vorgehensweise

4.1 Allgemeines zu der methodischen Vorgehensweise

4.1.1 Methodik der Vorgehensweise

Die methodische Vorgehensweise erfolgt in vier Schritten. Die einzelnen Schritte sind jeweils in Versuchsreihen untergliedert, deren Durchführung mit PP oder PLA als Matrixkunststoff stattfindet. Auf diese Weise können systematisch die Einflüsse von Matrixpolymer und Füllstoff herausgearbeitet werden. Ein Überblick über die methodische Vorgehensweise wird in Abbildung 4-1 gegeben.

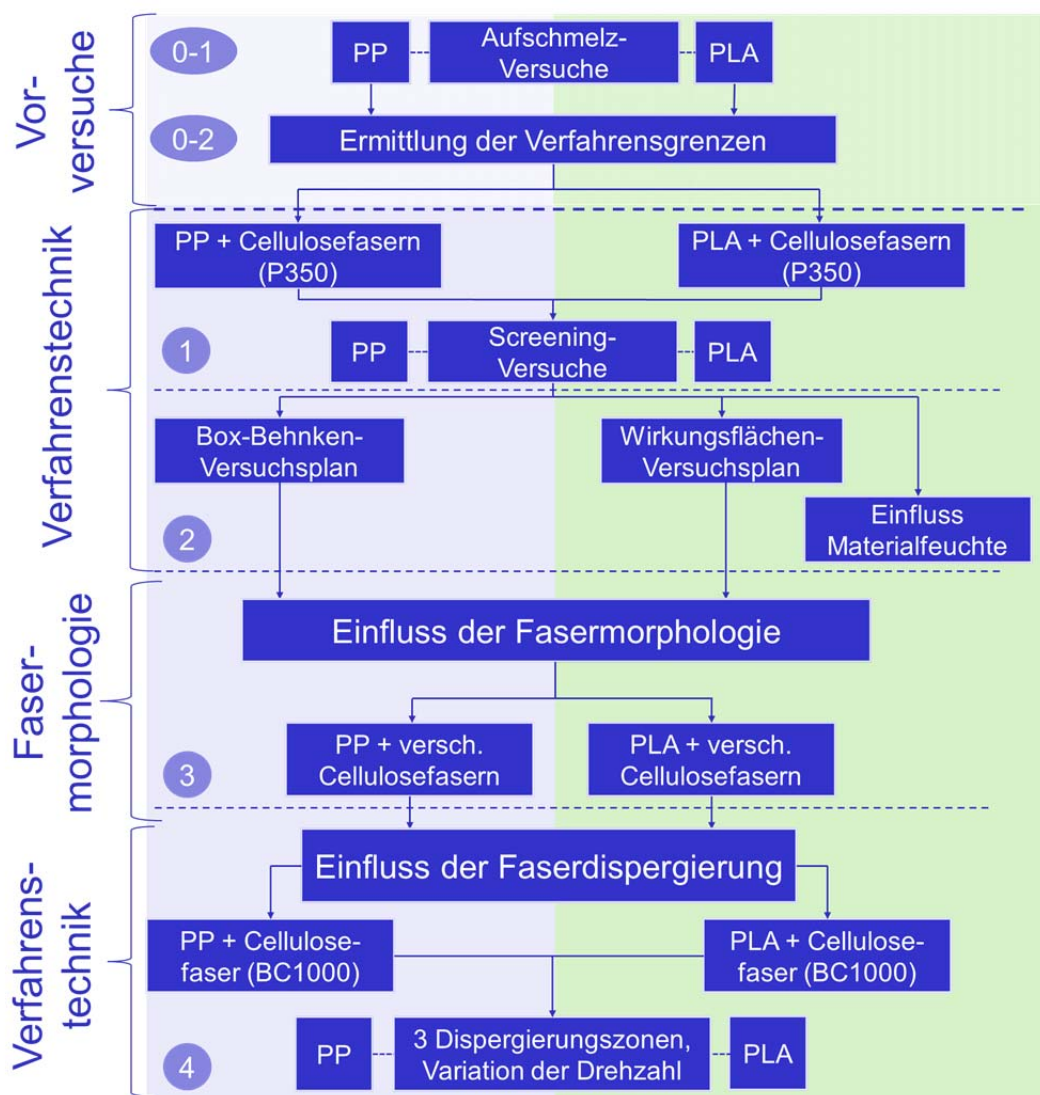


Abbildung 4-1: Überblick der durchgeführten Untersuchungen untergliedert in PP + Cellulosefaser (links) und PLA + Cellulosefaser (rechts)

Die **Vorversuche** (0-1 und 0-2) dienen als Grundlage für die eigentlichen Untersuchungen. Zunächst wurden in den Aufschmelzversuchen (0-1) geeignete Aufschmelzzonen für die PP- und PLA-Matrix konfiguriert und bei verschiedenen Spezifischen Füllgraden und Drehzahlen auf ihre Wirkung untersucht. Ziel war es bei die-

sen Versuchen jeweils für die PP- und PLA-Matrix geeignete Aufschmelzzonen zu entwerfen. Für jede Matrix sollte dabei eine möglichst schonende Aufschmelzung und eine Aufschmelzung mit hohem Energieeintrag bewerkstelligt werden. Wichtig ist hierbei, dass auch bei niedrigen Temperaturen der Matrixkunststoff nach der Aufschmelzzone aufgeschmolzen ist. Die Ermittlung der Verfahrensgrenzen (0-2) diene im Anschluss an die Aufschmelzversuche dazu, jeweils für die PP- und PLA-Cellulosefaser-Compoundierung ein möglichst großes Prozessfenster bei gleichzeitig hohem Faseranteil zu ermitteln. Dabei wurden sowohl die Drehzahlen, als auch die Spezifischen Füllgrade und die Faseranteile variiert. Für die PP-CF-Compounds hat sich hierbei ein Faseranteil von 20 wt.-% und für die PLA-CF-Compounds ein Faseranteil von 25 wt.-% als vorteilhaft erwiesen.

Die **Identifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter** (Versuchsreihe 1) ist der erste Schritt der weiteren methodischen Untersuchungen, welche in dieser Arbeit vorgestellt werden. Bei diesen sogenannten Screening-Versuchen werden zunächst die Einflüsse von verfahrenstechnischen Größen wie z.B. die Drehzahl und der Spezifische Füllgrad untersucht. Durch diese Versuche soll ermittelt werden, welche Stellgrößen einen Einfluss auf verfahrenstechnische Zielgrößen (Schmelztemperatur, SME, etc.) und materialtechnische Zielgrößen (Zugfestigkeit, Viskosität, Farbe, etc.) haben. Ziel der Versuche ist zudem die Überprüfung der Hypothesen 1, 2, 4 und 5 (Kapitel 1.2, S. 5).

Die **Quantifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter** (Versuchsreihe 2) erfolgt über verschiedene Versuchspläne, mit Hilfe derer die identifizierten einflussgebenden Faktoren aus (1) genauer auf ihre Wirkung hin untersucht werden. Auf Grundlage der Ergebnisse sollen die Hypothesen 3, 4 und 6 (Kapitel 1.2, S. 5) auf ihre Richtigkeit überprüft werden.

Die **Charakterisierung der Einflüsse der Fasermorphologie** (Versuchsreihe 3) umfasst die Untersuchung des Einflusses der Faserform, wie z.B. Faserlänge, L/d-Verhältnis und Aspect Ratio-Verteilung sowie der Herkunft der Cellulosefasern auf die materialtechnischen Eigenschaften der PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds. Die Ergebnisse dieser Versuche dienen der Überprüfung der Hypothesen 7, 8 und 9 (Kapitel 1.2, S. 6).

Der **Einfluss von Dispergierungszonen und Drehzahlen** (Versuchsreihe 4) auf die Agglomeration von längeren Cellulosefasern wird ebenfalls untersucht. Dazu erfolgt die Herstellung von Compounds mit drei unterschiedlichen Dispergierungszonen bei variierender Drehzahl und die anschließende Charakterisierung des hergestellten Materials. Diese Versuche sollen die Hypothese 10 (Kapitel 1.2, S. 6) auf ihre Richtigkeit überprüfen.

4.1.2 Versuchsreihen übergreifendes Vorgehen

In allen Versuchsreihen werden folgende Rezepturen verwendet:

- PP-Matrix: Zugabe von 20,0 wt.-% Cellulosefasern und 3,0 wt.-% Haftvermittler
- PLA-Matrix: Zugabe von 25,0 wt.-% Cellulosefasern

Die Zugabe der Cellulosefasern zu den Matrices entspricht einem volumetrischen Anteil V_f von 13,0 vol.-% (PP-Compounds) bzw. 21,5 vol.-% (PLA-Compounds). Die Werte wurden anhand der folgenden Gleichung 4-1 (vgl. [32]) berechnet:

$$V_f = \frac{1}{1 + \frac{1 - \psi_f \cdot \rho_{cell}}{\psi_f \cdot \rho_m}} \quad \text{Gleichung 4-1}$$

Mit ψ_f = Gewichtsanteil der Fasern (PP-Compounds = 0,2; PLA-Compounds = 0,25)

ρ_{cell} = Dichte der Cellulosefasern = 1,512 g/cm³ [60]⁵

ρ_m = Dichte des Matrixkunststoffes (Dichte PP = 0,905 g/cm³ [103], Dichte PLA = 1,24 g/cm³ [164])

Durch den unterschiedlichen Faseranteil in den PP- und PLA-Matrices können bestimmte Vergleiche nur bedingt angestellt werden. Dies wird allerdings aufgrund der Zielstellung des möglichst hohen Faseranteils bei gleichzeitig breitem, zu untersuchenden Prozessfenster als untergeordnet angesehen.

Für alle Versuche werden nur Materialien verwendet, die jeweils der gleichen Charge angehören, um einen Einfluss durch evtl. Chargenunterschiede auf die Ergebnisse auszuschließen.

Ein großer Teil der Bestimmung der materialtechnischen Zielgrößen (Zugfestigkeit, Biegefestigkeit, Schlagzähigkeit, Wärmeformbeständigkeit, etc.) erfolgt an spritzgegossenen Normprüfkörpern des Typs 1A (siehe Kapitel 3.3). Es besteht an dieser Stelle die Gefahr, dass durch die zusätzliche thermische und scherinduzierte Belastung beim Spritzgießen das Material stärker belastet wird, als bei der Extrusion selbst. Diese Bedenken wurden im Vorfeld bei der Planung der Methodik berücksichtigt. Aufgrund der vorgesehenen Nutzung der Compounds speziell für die Spritzgieß-Anwendung ist eine spritzgießtechnische Verarbeitung vor der Bestimmung der Zielgrößen deshalb sinnvoll, da nur so erkannt werden kann, ob die evtl. vorhandenen Einflüsse aus der Compoundierung auch in das fertige spritzgegossene Bauteil übertragen werden.

⁵ Die angegebene Dichte entspricht der Materialdichte in komprimierten Zustand, nach dem Spritzgießprozess.

4.2 Identifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter

4.2.1 Allgemeines zu den Versuchen

Die Screening-Versuche dienen der Ermittlung der Einflüsse der verfahrenstechnischen Faktoren Einfluss auf die extrusionstechnische Verarbeitung der Compounds und die materialtechnischen Zielgrößen. Folgende verfahrenstechnischen Faktoren werden untersucht:

- Schneckengeometrie
- Feuchtigkeit der Cellulosefasern
- Drehzahl der Schnecke
- Spezifischer Füllgrad
- Atmosphärische Rückwärtsentgasung
- Vakuumentgasung

Bei der Schneckengeometrie gilt es den Einfluss der Scherung und der unterschiedlichen Misch- und Stauwirkung auf die Zielgrößen zu ermitteln. Hierzu werden jeweils für die Verarbeitung von PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds eine Schnecke mit hohem Scherenergieeintrag und eine mit geringem Scherenergieeintrag konfiguriert (siehe Kapitel 4.2.3). Die Feuchtigkeit der Cellulosefasern wird variiert, um den Einfluss der Feuchtigkeit auf die extrusions- und materialtechnischen Zielgrößen zu verifizieren. In vielen Veröffentlichungen wird auf die unbedingte Notwendigkeit der Vortrocknung von Naturfasern hingewiesen. Dies soll überprüft werden. Das Zusammenspiel von Drehzahl der Schnecken und Spezifischem Füllgrad ist bekannt, jedoch sind bei der Compoundierung von naturfaser- und insbesondere cellulosefaserverstärkten Kunststoffen die Einflüsse dieser beiden Faktoren noch nicht vollständig untersucht. Besonders im Hinblick auf die materialtechnischen Eigenschaften, wie Zugfestigkeit, Schlagzähigkeit, Farbe, etc. gibt es noch keine strukturierten, umfangreichen Untersuchungen. Die Variation von atmosphärischer Rückwärtsentgasung und Vakuumentgasung sollen den Einfluss dieser beiden Faktoren, besonders in Kombination mit der Variation der Cellulosefaser-Feuchtigkeit beleuchten.

Für die Screening-Versuche werden für die PP- und PLA-Versuche zur Erstellung eines Versuchsplans Minus- und Plus-Stufen in den entsprechenden Vorversuchen (0-2, Ermittlung der Verfahrensgrenzen) bestimmt. Diese Stufen sind in Tabelle 4-1 dargestellt.

Tabelle 4-1: Minus- und Plus-Stufen der Screening-Versuche für PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds

Faktor	PP + Cellulosefaser		PLA + Cellulosefaser	
	„-“-Stufe	„+“-Stufe	„-“-Stufe	„+“-Stufe
Schneckenengeometrie	KB-MPE	KB	KB-MPE	KB
Faserfeuchtigkeit [wt.-%]	0,1	10,0	0,1	10,0
Spez. Füllgrad [kg/min*h]	0,0625	0,15	0,0667	0,2667
Schneckendrehzahl [min⁻¹]	100	520	200	500
Vakuumentgasung [mbar]	nein (1000)	ja (100)	nein (1000)	ja (100)
Atm. Rückwärtsentgasung	nein	ja	nein	ja

Die Compoundierung des PP-CF ist im Vergleich zu dem PLA-CF bei der Plus-Stufe des Spezifischen Füllgrades nur mit einem deutlich geringeren Spezifischen Füllgrad möglich. Die Plus-Stufe bei der Schneckendrehzahl musste ebenfalls leicht nach oben angehoben werden. Die Minus-Stufe des Spezifischen Füllgrades soll bei beiden Systemen ungefähr gleichwertig sein, daraus resultiert die auf 100 min⁻¹ reduzierte Drehzahl bei den PP-CF-Compounds.

Aus den oben angegebenen Stufen ergeben sich durch die Variation aller Faktorstufen 64 verschiedene Durchläufe für jeden Matrixkunststoff. Durch die Auswahl eines Versuchsplans mit der Auflösung VI⁶ kann die Durchlaufanzahl auf 32 halbiert werden. Die Haupteffekte und Zweifachwechselwirkungen sind unvermerkt [134].

Während der Compoundierung werden folgende Parameter dokumentiert:

- Druck vor der Düse [bar]
- Schmelztemperatur nach Düsenaustritt (gemessen mit Handthermometer) [°C]
- Drehmoment (zur Bestimmung des SME) [Nm]

Im Anschluss an die Extrusion werden folgende Parameter untersucht:

- Verhalten der Materialien bei Zugbeanspruchung
- Verhalten der Materialien bei Biegebeanspruchung
- MFR- und MVR-Werte

⁶ Die detaillierten Versuchspläne sind im Anhang einzusehen, siehe Kapitel 8A.1, S.164 und Kapitel 8A.2, S.166

- Viskosität in Abhängigkeit der Scherrate
- L*- und b*-Werte der hergestellten Pressplatten
- Wärmeformbeständigkeit (HDT/A-Wert)
- Charpy-Schlagzähigkeit

Bei der Viskositätsmessung der PLA-CF-Compounds werden im Gegensatz zu den PP-CF-Compounds MFR-Messungen durchgeführt. Bei den PLA-CF-Compounds besteht ein linearer Zusammenhang zwischen Materialfeuchtigkeit und Viskosität, der dazu führt, dass mindestens zwei Doppelbestimmungen (teilweise auch drei) bei verschiedenen Feuchtigkeiten durchgeführt werden müssen. Dies erfordert eine hohe Anzahl an Messungen, die mit MFR-Messungen einfacher durchgeführt werden können. Die Ermittlung der Viskosität der PP-CF-Compounds erfolgt mit einem Kapillarrheometer.

4.2.2 Einfluss der Schnecken geometrie

Basierend auf den Ausführungen in Kapitel 2.2.2.2 werden die für die dispersive und distributive Mischwirkung entscheidenden Schneckenelemente in Relation gesetzt (Tabelle 4-2).

Tabelle 4-2: Relative Einordnung der Schneckenelemente nach Scher-, Misch- und Stauwirkung (Vergleich nach [121] und [125])

Sneckenelement	Scherwirkung	Mischwirkung	Stauwirkung
E34/17/2R	1,5	0,0	16,7
KB 42.5/5/45/2L	10,0	3,9	-3,0
KB 25.5/5/45/2L	3,9	10,0	-5,0
KB 25.5/5/45/2R	8,0	15,0	15,0
KB 25.5/5/90/2N	7,2	27,5	5,0
MPE/34/17/2L bzw. R-G75/D	3,1	12,0	0,0
MPE/34/17/2L G50	1,5	2,0	-10,0
MPE/34/17/2R G25	1,0	3,0	15,0
ZB 25.5/3/10 L	3,0	20,0	8,0
BL 8.5 D01	10,0	10,0	15,0

Die Werte basieren vorrangig auf Darstellungen und Abbildungen von SÄMANN (vgl. [121], S. 235ff.) zu den Einflussfaktoren Länge der Schneckenelemente, Versatzwinkel, Scheibenbreite, Förderwirkung (fördernd, neutral, gegenfördernd). Diese Werte werden in Relation gebracht und zum Vergleich der verschiedenen Schneckenkonfigurationen bezüglich der Scher-, Misch- und Stauwirkung herangezogen. Die relativen Werte zu der Scherwirkung der MPE-Elemente stammen von SCHEEL [125] und werden mit den KB-Elementen ins Verhältnis gesetzt. Die Ergebnisse dieser relativen Abschätzung der Scher-, Misch- und Stauwirkung der verschiedenen verwendeten Schneckenelemente sind in Tabelle 4-2 dargestellt.

Die Bedeutung der Tabelle wird beispielhaft an dem Gegenförderelement E34/17/2R erläutert: Es bewirkt nur einen geringen Schereintrag und keine Vermischung, durch die Gegenförderung sorgt es aber für eine Stauwirkung und somit für eine Verlängerung der Verweilzeit der Schmelze. Die Bezeichnung bei den Knetblock-Elementen (KB a/b/c/d) steht für a= Länge des Elementes in mm, b= Anzahl der Knetscheiben, c= Versatzwinkel, d= Anzahl der Schmelzegänge und ob fördernd (L) oder gegenfördernd (R).

4.2.3 Untersuchte Schneckengeometrien

4.2.3.1 Schneckengeometrien für PP-Matrix

Die beiden für die Screening-Versuche verwendeten Schneckengeometrien PP-KB-MPE und PP-KB werden hinsichtlich ihrer Scher-, Misch- und Stauwirkung in Tabelle 4-3 gegenübergestellt. Die beiden Konfigurationen unterscheiden sich maßgeblich in der Scher- und Stauwirkung. Die Scherwirkung der PP-KB-Schneckenkonfiguration ist 1,7-mal so hoch, wie die der PP-KB-MPE-Konfiguration, die Stauwirkung 1,2-mal so hoch. Das bedeutet, dass sowohl die Scherwirkung als auch die Verweilzeit (durch die höhere Stauwirkung) in der PP-KB-Schneckenkonfiguration deutlich höher ist. Die Mischwirkung ist identisch. Die Aufschmelzzonen der beiden Schneckenkonfigurationen unterscheiden sich ebenfalls deutlich voneinander. Bei der PP-KB-Konfiguration ist die Scherwirkung 1,8-mal höher, die Mischwirkung 1,7-mal höher und die Stauwirkung 2,5-mal höher als bei der PP-KB-MPE-Konfiguration.

Tabelle 4-3: Relative Gegenüberstellung der Scher-, Misch- und Stauwirkung der verwendeten Schneckenkonfigurationen für die PP-Screening-Versuche, in Klammern sind die Werte für die Aufschmelzzonen dargestellt

Konfiguration	Scherwirkung	Mischwirkung	Stauwirkung
PP-KB-MPE (ASZ)	52 (27)	106 (55)	48 (28)
PP-KB (ASZ)	90 (48)	106 (95)	58 (70)

Die Gegenüberstellung der Schneckenkonfigurationen der PP-KB-MPE und der PP-KB-Schnecken erfolgt in Abbildung 4-2.

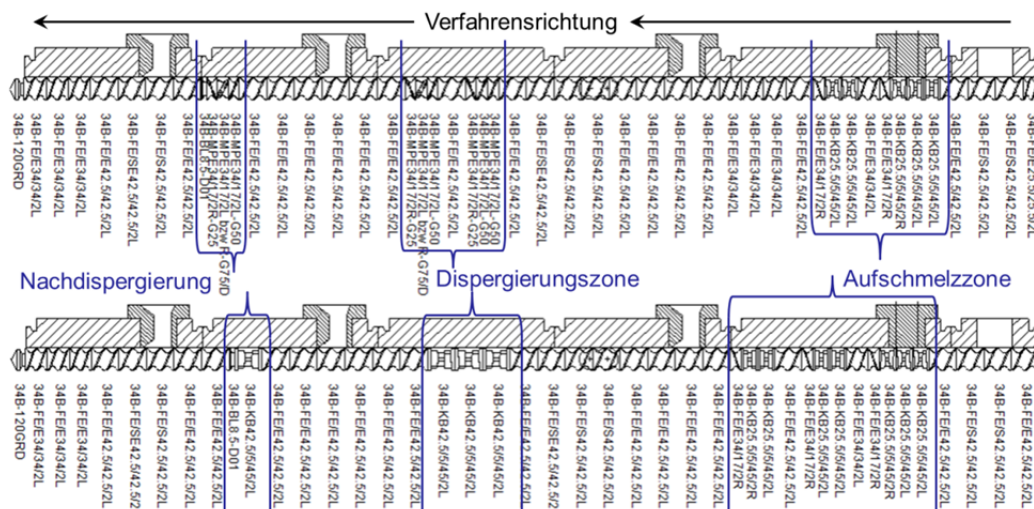


Abbildung 4-2: Gegenüberstellung der PP-KB-MPE und PP-KB-Schnecken mit Markierung der Aufschmelzzonen, der Dispergierungszonen und der Nachdispergierungen

Auffällig bei der Betrachtung der Abbildung 4-2 ist, dass die Aufschmelzzone der PP-KB-Schnecke (9D) deutlich länger ist, als die der PP-KB-MPE-Schnecke (5,75D). Die Dispergierungszonen und Nachdispergierungen sind annähernd gleich lang, jedoch besteht die Dispergierungszone der PP-KB-MPE-Schnecke aus zwei Mischkammern. Die Nachdispergierungen werden jeweils mit einer Stauscheibe zur Vakuumentgasung hin abgesperrt.

4.2.3.2 Schneckenometrien für PLA-Matrix

Die beiden für die Screening-Versuche verwendeten Schneckengeometrien PLA-KB-MPE und PLA-KB werden hinsichtlich ihrer Scher-, Misch- und Stauwirkung in Tabelle 4-4 gegenübergestellt. Die Scherwirkung der PLA-KB-Konfiguration ist im Verhältnis zu der PLA-KB-MPE-Geometrie 1,8-mal höher, die Mischwirkung mit 0,9-mal etwas geringer und die Stauwirkung mit 0,66-mal deutlich geringer.

mit einer Stauscheibe zur Entgasung hin abgesperrt.

4.3 Quantifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter

4.3.1 Quantifizierungsversuche für PP

Die PP-Quantifizierungsversuche werden mit der PP-KB-Schneckenkonfiguration durchgeführt. Zur weiteren Ermittlung der Einflüsse der Schneckendrehzahl, des Spezifischen Füllgrades und der Faserfeuchtigkeit erfolgt eine detaillierte Untersuchung der drei Faktoren unter Verwendung eines Box-Behnken-Versuchsplans.

Der Spezifische Füllgrad variiert im Bereich von 0,1 bis 0,15 kg/min*h, die Schneckendrehzahl im Bereich von 200 bis 500 min⁻¹ und die Feuchtigkeit der Cellulosefasern wird im Bereich von 5 bis 15 wt.-% eingestellt. Aus den Variationen der drei Faktoren ergeben sich bei diesem Versuchsplan 13 Durchläufe (siehe Abbildung 4-4). Die genauen Faktorvariationen der 13 Versuchsdurchläufe sind im Anhang aufgelistet. Die Compoundierung erfolgt unter Verwendung der PP-KB-Schneckenkonfiguration.

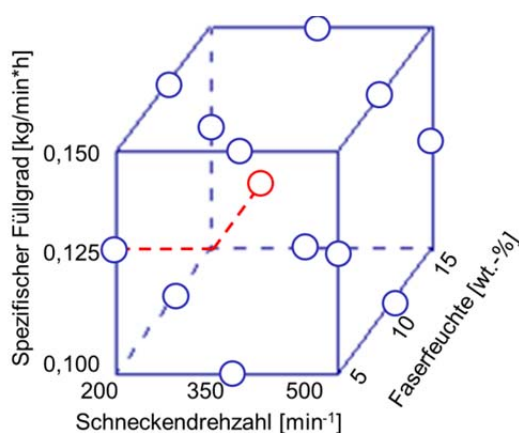


Abbildung 4-4: Box-Behnken-Versuchsplan zur Variation von Spezifischem Füllgrad, Schneckendrehzahl und Faserfeuchte

4.3.2 Quantifizierungsversuche für PLA

Die PLA-Quantifizierungsversuche sind aufgeteilt in einen Wirkungsflächen-Versuchsplan und einen Versuchsplan zur Variation der PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit. Der Wirkungsflächen-Versuchsplan ermöglicht die detaillierte Untersuchung der Faktoren Schneckendrehzahl und Spezifischer Füllgrad. Bei der Variation der PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit werden die Einflüsse der Ausgangsfeuchtigkeiten der beiden Materialkomponenten genauer betrachtet. Für die Compoundierung wird die PLA-KB-Schneckenkonfiguration verwendet.

Wirkungsflächen-Versuchsplan

Im Wirkungsflächen-Versuchsplan werden die Schneckendrehzahlen in den Abstufungen 200, 350 und 500 min⁻¹ variiert, der Spezifische Füllgrad wird in den Abstufungen 0,133, 0,2 und 0,267 kg*min/h verändert. Durch die Variation aller möglichen Kombinationsmöglichkeiten ergeben sich 9 Versuchsdurchläufe. Diese sind in Tabelle 4-5 dargestellt.

Tabelle 4-5: Faktorstufen für den PLA-Wirkungsflächen-Versuchsplan

Spez. Füllgrad [kg*min/h]	Schneckendrehzahlen [min ⁻¹]		
0,133	200	350	500
0,2	200	350	500
0,267	200	350	500

Die Feuchtigkeit bei der Compoundierung der Cellulosefasern beträgt 7,5 wt.-%.

Variation von PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit

Zur genaueren Untersuchung des Einflusses der PLA-Ausgangsfeuchte in Kombination mit der Ausgangsfeuchte der Cellulosefasern wird ein eigener Versuchsplan erstellt. Die Variation der PLA-Feuchte erfolgt in zwei Stufen, getrocknet mit einem Feuchtegehalt von 0,015 wt.-% und ungetrocknet mit einem Feuchtegehalt von 0,09 wt.-%. Die Feuchtigkeit der Cellulosefasern wird ebenfalls in zwei Stufen variiert (0,1 wt.-% und 10,0 wt.-%).

Die Kombinationen der vier Versuchsdurchläufe sind in Tabelle 4-6 angegeben.

Tabelle 4-6: Faktorstufen für die Variation der PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeiten

Nr.	Kombination	Feuchtigkeitsanteil PLA [wt.-%]	Feuchtigkeitsanteil Cellulosefasern [wt.-%]
1	trocken-trocken	0,015	0,1
2	trocken-feucht	0,015	10,0
3	feucht-trocken	0,090	0,1
4	feucht-feucht	0,090	10,0

Die Motivation für diese Versuchsreihe ist es, herauszufinden, ob die Vortrocknung des Matrixkunststoffes PLA bei der extrusionstechnischen Verarbeitung in Verbindung mit Cellulosefasern zwingend notwendig ist, oder ob darauf verzichtet werden kann. Der Verzicht der Vortrocknung würde einen erheblich geringeren Aufwand bei der Vorbereitung sowie ein hohes Einsparpotenzial beim Energieverbrauch bedeuten. In vielen Veröffentlichungen wird ein teilweise hoher Aufwand bei der Verarbeitung von PLA in Verbindung mit Naturfasern beschrieben. Zusätzlich ist das Vorgehen bei der Trocknung sehr unterschiedlich (siehe Tabelle 4-7).

Tabelle 4-7: Literaturangaben zur Vortrocknung von Naturfasern und PLA vor der Verarbeitung (k.A.= keine Angabe)

Trocknung PLA	Trocknung Naturfasern	Trockner	Restfeuchte	Besonderheiten	Quelle
24h, 80°C	24h, 80°C	normal	k.A.	Verarbeitung unter N ₂ -Atmosphäre	[3]
24h, 40°C	6h, 105°C	normal	k.A.	-	[84]
k.A., 100°C	24h, 100°C	Vakuum	k.A.	-	[7]
4h, 100°C	4h, 100°C	normal	k.A.	-	[87]
12h, 100°C	12h, 100°C	Vakuum	k.A.	Verarbeitung unter N ₂ -Atmosphäre	[80]
k.A.	über Nacht, 80°C	normal	3-4 wt.-%	-	[43]
4h, 100°C	6h, 80°C	Vakuum	k.A.	-	[92]
k.A.	1h, 100°C	normal	k.A.	-	[67]
k.A., 60°C	k.A.	Vakuum	k.A.	Trocknung in Anwesenheit von P ₂ O ₅	[44]

Ein erhöhter Anteil an Feuchtigkeit im Prozess während der Verarbeitung kann die Hydrolyse des Polylactids erheblich beschleunigen. VAN DEN OEVER et al. haben postuliert, dass jedes im Prozess vorhandene Wassermolekül im schlimmsten Falle die Spaltung einer PLA-Molekülkette bewirken kann. Die Berechnung der maximalen Anzahl der Kettenspaltungen $n_{Spalt.}$ pro PLA-Molekül ist in Gleichung 4-2 beschrieben (vgl. [106]).

$$n_{Spalt.} = \frac{M_{PLA} (\psi_f \psi_{f,H_2O} + (1-\psi_f) \cdot \psi_{m,H_2O})}{M_{H_2O} \cdot (1-\psi_f)} \quad \text{Gleichung 4-2}$$

Mit M_{PLA} = Molare Masse des PLA (82240 g/mol)⁷

M_{H_2O} = Molare Masse von Wasser (18 g/mol)

ψ_f = Gewichtsanteil der Fasern

ψ_{f,H_2O} = Gewichtsanteil des Wassers in den Fasern

ψ_{m,H_2O} = Gewichtsanteil des Wassers im PLA

⁷ Ergebnis eigener GPC-Messungen des reinen PLA 3251D

Die resultierende theoretische molare Masse $M_{PLA,th.}$ des PLA nach der Verarbeitung ergibt sich aus dem Quotienten der ursprünglichen molaren Masse $M_{PLA,0}$ und der berechneten Anzahl der Kettenspaltungen, dargestellt in Gleichung 4-3.

$$M_{PLA,th.} = \frac{M_{PLA,0}}{n_{Spalt.}} \quad \text{Gleichung 4-3}$$

Die resultierenden theoretischen molaren Massen des PLA nach der Verarbeitung sind in Tabelle 4-8 angegeben.

Tabelle 4-8: Anzahl der möglichen Kettenspaltungen und die daraus theoretisch resultierende molare Masse des PLA

Nr.	Kombination	Anzahl der Kettenspaltungen ($n_{Spalt.}$)	Theoretische molare Masse ($M_{PLA,th.}$) [g/mol]
1	trocken-trocken	1,24	66207
2	trocken-feucht	86,05	956
3	feucht-trocken	3,17	25946
4	feucht-feucht	87,98	935

Aus der Tabelle geht hervor, dass mit einer erheblichen Abnahme der molaren Masse des PLA zu rechnen ist. Selbst bei der günstigen Kombination mit trockenem PLA und getrockneten Cellulosefasern wäre eine Reduzierung der molaren Masse um ca. 20% zu erwarten. Um die tatsächliche molare Masse des PLA nach der Verarbeitung zu ermitteln, werden im Anschluss daran GPC-Messungen durchgeführt.

4.4 Charakterisierung der Einflüsse der Fasermorphologie

In dieser Versuchsreihe sollen die fasermorphologischen Einflüsse auf die PP- und PLA-Compouneigenschaften untersucht werden. In Kapitel 2.2.1.4 wurden die unterschiedlichen Eigenschaften der Hard- und Softwood-Cellulosefasern beschrieben. In dieser Versuchsreihe soll nun ermittelt werden, ob sich die unterschiedlichen Eigenschaften (wie z.B. Nullreißfestigkeit bei Papier) auch in den Eigenschaften der daraus hergestellten Compounds widerspiegeln. Des Weiteren werden die Cellulosefasern hinsichtlich des Einflusses von Aspect Ratio, der Breite der Verteilung des Aspect Ratio, der Faserlänge und der Kompaktierung der Cellulosefasern untersucht. Die Versuchsreihe wird jeweils mit PP und PLA als Matrix durchgeführt. Tabelle 4-9 dient als Übersicht der untersuchten Einflussgrößen der verschiedenen Cellulosefasertypen (CFT).

Tabelle 4-9: Übersicht der untersuchten Einflussgrößen der verschiedenen Cellulosefasertypen (SW= Softwood, HW= Hardwood)

Einflussgrößen	Abstufungen	Eigenschaften			Cellulosefasertyp (CFT)
		mittlere Länge [µm]	Aspect Ratio (AR) ⁸	AR-Verteilung	
Aspect Ratio (AR)	niedrig	75,1	3,4	4,25	BE-Mix
	hoch	65,5	5,0	4,03	BC200
Länge und Herkunft	kurz/HW	75,1	3,4	4,25	BE-Mix
	lang/HW	123,8	4,2	5,33	BC1K-Mix
	kurz/SW	76,3	3,0	3,75	FDY600
	lang/SW	116,7	7,5	7,66	FiF400
Kompaktierung/Faser	Faseriger Füllstoff	76,3	3,0	3,75	FDY600
	Partikel	79,3	2,3	2,85	P350
Länge und Aspect Ratio (AR)-Verteilung	kurz/weit	75,1	3,4	4,25	BE-Mix
	lang/weit	116,4	5,3	6,25	BC1K
	kurz/eng	43,6	3,6	3,25	B600
	lang/eng	123,8	4,2	5,33	BC1K-Mix

Wie der Tabelle 4-9 zu entnehmen ist, werden verschiedene CFT mehrmals verwendet, wenn ihre Eigenschaften dies erlauben. Die verschiedenen CFT unterscheiden sich entweder durch ihre mittlere Faserlänge oder durch ihren mittleren Aspect Ratio oder die Aspect Ratio-Verteilung. Die Vorgehensweise soll exemplarisch an den Einflussgrößen „Länge und Herkunft“ veranschaulicht werden. Verglichen werden hierbei die mittlere Faserlänge (kurz oder lang) der CFT und die Herkunft (Soft- oder Hardwood). Beim CFT BE-Mix handelt es sich um einen faserigen Füllstoff (kurz) und es ist ein Hardwood-CFT. Dieser CFT kann demnach mit dem BC1K-Mix (Hardwood und Faser) und dem FDY600 (Softwood und faseriger Füllstoff) verglichen werden.

⁸ An dieser Stelle ist der Aspect Ratio angegeben, der aus der Berechnung der mittleren Länge und der mittleren Dicke der Cellulosefasern resultiert, siehe Abbildung 3-1 und Abbildung 3-2. Dieser Wert ist in der Praxis einfacher zugänglich.

Auf diese Weise können zum einen die Einflüsse der Faserlänge und zum anderen der Faserherkunft untersucht werden. Zur Untersuchung der Einflussgrößen „Länge und Herkunft“ sowie „Länge und Aspect Ratio (AR)-Verteilung“ werden zweistufige vollfaktorielle Versuchspläne zur Auswertung verwendet. Bei den übrigen Versuchen erfolgt ein einfacher Vergleich der jeweiligen CFT.

Bei der Herstellung der Compounds werden die atmosphärische Rückwärtsentgasung und die Vakuumentgasung verwendet und die Cellulosefaser-Feuchte wird auf 10,0 wt.-% eingestellt. Als Schneckenkonfiguration dient die PP-KB- bzw. PLA-KB. Die ausführlichen Versuchspläne sind im Anhang (Kapitel 8A.6, S. 170 und Kapitel 8A.7, S. 171) einzusehen.

4.5 Einflüsse von Dispergierungszonen und Drehzahl

Zur Untersuchung des Einflusses der Faserdispergierung werden drei verschiedene Dispergierungszonen in Verbindung mit unterschiedlichen Nachdispergierungen untersucht. Während der Versuche wird ebenfalls der Einfluss der Schneckendrehzahl auf die Zielgrößen untersucht.

Bei den Versuchen dienen sowohl PP als auch PLA als Matrixkunststoff. Als Cellulosefasertyp wird das BC1K verwendet, da u.a. bei dieser CFT in den vorherigen Versuchen die Bildung von Agglomeraten in der Schmelze beobachtet wurde. Die Drehzahl bei der Compoundierung wird in drei Stufen (100, 200 und 300 min⁻¹) variiert. Die Drehzahlen differieren in einem geringeren Bereich als bei den Screening- und Quantifizierungsversuchen, da bei der Compoundierung der längeren CFT eine Anpassung der Drehzahlen aufgrund der geringeren Förderleistung der ZSFE erfolgt ist. Die Versuchsparameter sind in Tabelle 4-10 angegeben.

Tabelle 4-10: Versuchsparameter für die Faserdispergierung

Matrix	Drehzahl [min ⁻¹]	Spezifischer Füllgrad [kg*min/h]
PP (Durchsatz = 13,76 kg/h, 20 wt.-% BC1K)	100	0,1376
	200	0,0688
	300	0,0459
PLA (Durchsatz = 17,0 kg/h, 25 wt.-% BC1K)	100	0,17
	200	0,085
	300	0,0567

Bei der Variation der Dispergierungszonen wird im Bereich des Feststoff-Einzugs,

der Plastifizierung, der Entgasung und des Druckaufbaus jeweils die Schneckenkonfiguration PP-KB bzw. PLA-KB verwendet. In Abbildung 4-5 sind die verschiedenen Dispergierungszone veranschaulicht, außerdem werden die Scher-, Misch- und Stauwirkung der Dispergierungszone tabellarisch angegeben.

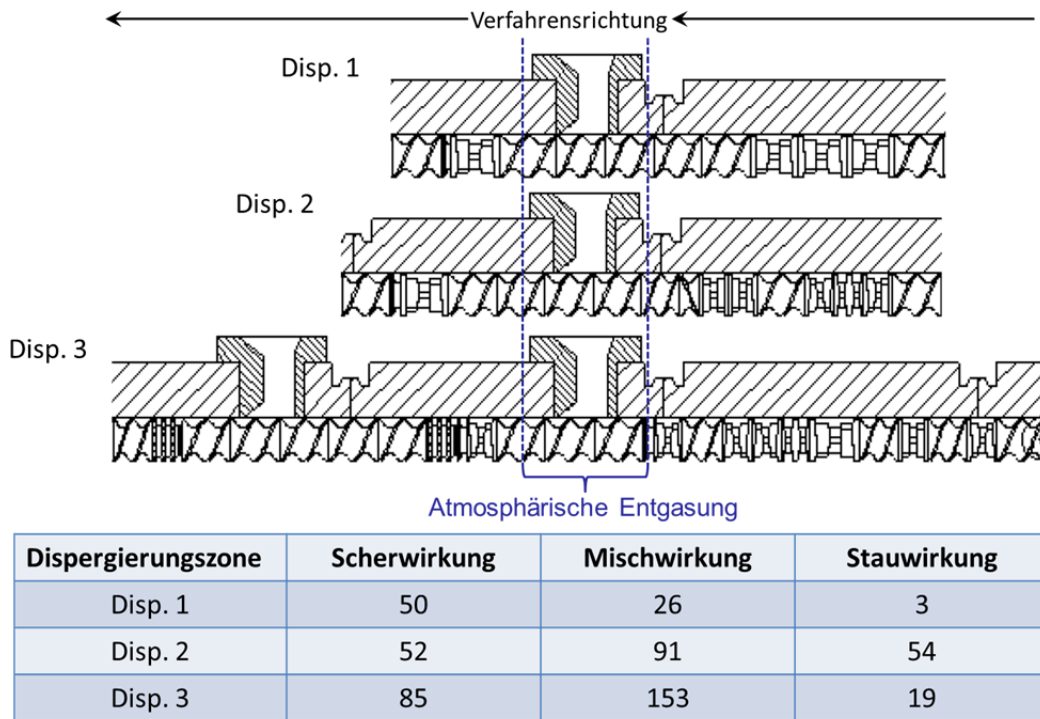


Abbildung 4-5: Vergleich der verwendeten Dispergierungszone mit Angabe von Scher-, Misch- und Stauwirkung

Die Disp. 1 entspricht der bisher verwendeten Dispergierungszone der PP-KB- bzw. PLA-KB-Konfiguration. Die Scherwirkung ist mit 50 vergleichsweise gering, die Mischwirkung ist es ebenfalls. Das Gleiche gilt für die Stauwirkung. Die Disp. 2 hat eine ähnlich geringe Scherwirkung wie die Disp. 1, jedoch aufgrund des Einsatzes gegenfördernder und neutraler/nichtfördernder Elemente eine höhere Misch- und Stauwirkung. Die Disp. 3 ergibt die höchste Scher- und Mischwirkung und eine mittlere Stauwirkung.

Bei der Herstellung der Compounds werden die atmosphärische Rückwärtsentgasung und die Vakuumentgasung verwendet, die Cellulosefaser-Feuchte wird auf 10,0 wt.-% eingestellt.

5 Ergebnisse und Diskussion

5.1 Identifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter

5.1.1 PP-Cellulosefaser-Compounds

5.1.1.1 Einflüsse auf verfahrenstechnische Zielgrößen

Die Abbildung 5-1 zeigt die standardisierten Effekte der Faktoren und der Wechselwirkungen (WW) auf die materialtechnischen Zielgrößen. Der standardisierte Effekt wird durch Division des beobachteten Effektes durch die zugehörige Standardabweichung erhalten [154] und ist demnach ein Maß für den Einfluss eines Faktors auf die jeweilige Zielgröße.

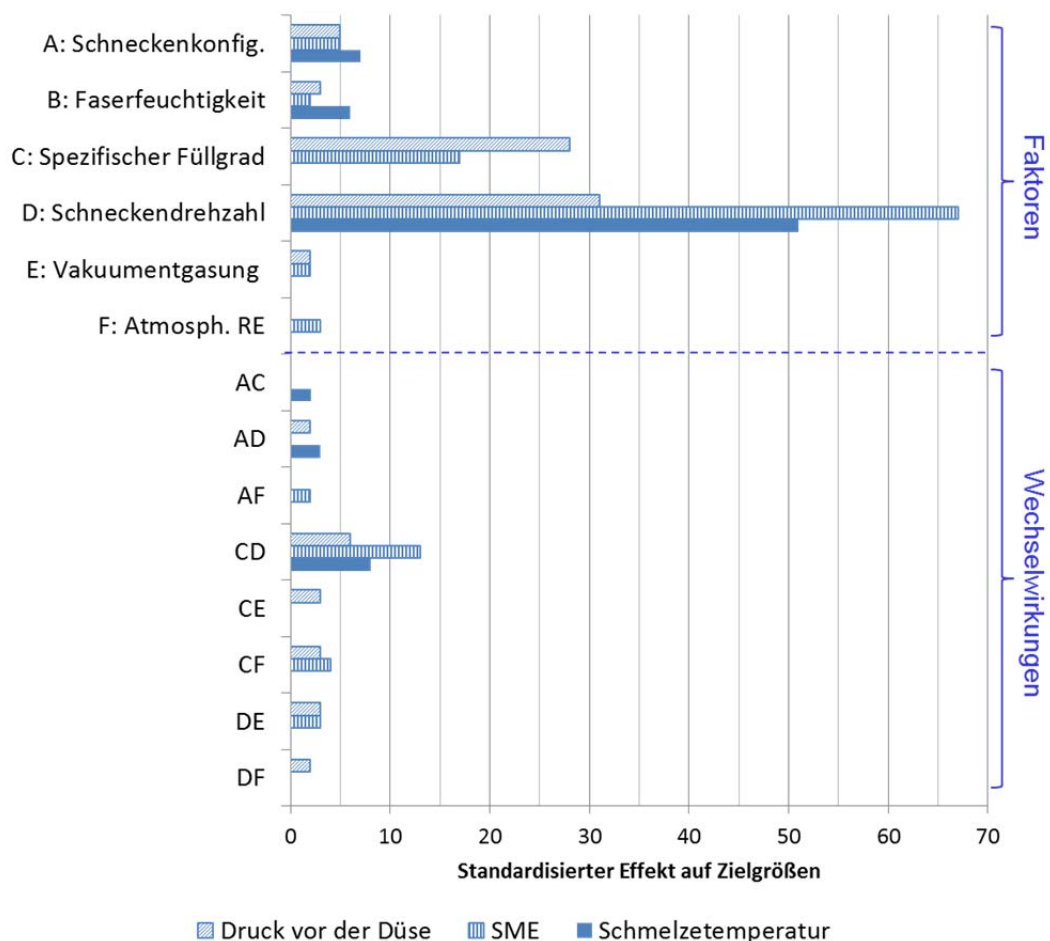


Abbildung 5-1: Standardisierte Effekte auf verfahrenstechnische Zielgrößen der Faktoren und Wechselwirkungen für PP-CF-Compounds

Die Ergebnisse zeigen, dass die Schmelztemperatur der PP-Compounds im Wesentlichen von der Schneckendrehzahl, der Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und Drehzahl (WW CD), der Schneckenkonfiguration, sowie der Faserfeuchtigkeit beeinflusst wird. Der Spezifische Mechanische Energieeintrag (SME) wird am stärksten von der Schneckendrehzahl beeinflusst (Effekt = 67), weiteren Einfluss haben

der Spezifische Füllgrad, die WW von Spezifischem Füllgrad und Drehzahl (CD) und in geringerem Maße die Schneckenkonfiguration. Der Druck vor der Düse wird maßgeblich beeinflusst von der Schneckendrehzahl und dem Spezifischen Füllgrad. Weiterhin haben die WW CD und die Schneckenkonfiguration einen geringeren Einfluss. Bei den niedrigen Füllgraden in Verbindung mit geringer Schneckendrehzahl kommt es außerdem zu großen Druckschwankungen. Die Faktoren Vakuumentgasung und Atmosphärische Rückwärtsentgasung haben keinen nennenswerten Einfluss auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen. Auch die Wechselwirkungen AC, AD, AF, CE, CF, DE und DF besitzen nur einen sehr geringen, vernachlässigbaren Einfluss auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen.

Die Tabelle 5-1 zeigt die Höhe der Haupteffekte der Faktoren auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen bei der PP-Cellulosefaser-Compoundierung.

Bei der Betrachtung der Ergebnisse zeigt sich, dass die Schmelzetemperatur im Wesentlichen von der Schneckendrehzahl beeinflusst wird. Bei der niedrigen Schneckendrehzahl von 100 min^{-1} liegt die mittlere Schmelzetemperatur am Düsenaustritt um 9% niedriger als im Gesamtdurchschnitt aller Messungen. Bei einer hohen Drehzahl steigt die Temperatur dagegen um 8% im Vergleich zum Gesamtdurchschnitt auf 240°C . Die Schneckenkonfiguration und die Faserfeuchtigkeit beeinflussen die Schmelzetemperatur lediglich in einem Bereich von $\pm 1\%$ Abweichung um den Mittelwert aller Messungen. Die anderen Faktoren haben keinen Einfluss auf die Schmelzetemperatur.

Der Spezifische Mechanische Energieeintrag (SME) wird durch die Erhöhung der Schneckendrehzahl von 346 kJ/kg auf 737 kJ/kg erhöht. Dies entspricht einer Steigerung des SME um 33% im Vergleich zu den Mittelwerten. Eine Erhöhung des Spezifischen Füllgrads bewirkt eine Verringerung des SME um 7% im Vergleich zu den Mittelwerten. Die Auswahl der Schneckenkonfiguration wirkt sich insofern aus, dass bei der Verwendung der PP-KB-Schnecke ein um 3% verminderter SME erreicht werden kann.

Tabelle 5-1: Haupteffekte der Faktoren auf verfahrenstechnische Zielgrößen für PP-CF-Compounds (Datenmittelwerte), in Klammern ist die jeweilige prozentuale Abweichung vom Mittelwert angegeben

Faktoren	Faktorstufen	Schmelze- temperatur [°C]	Spez. Mech. Ener- gieeintrag (SME) [kJ/kg]	Druck vor der Düse [bar]
A Schnecken- geometrie	KB-MPE	225 (+1)	568 (+3)	5,0 (-11)
	KB	220 (-1)	539 (-3)	6,2 (+11)
B Faserfeuchtigkeit	0,1 wt.-%	225 (+1)	545 (-1)	5,4 (-4)
	10,0 wt.-%	219 (-1)	560 (+1)	5,9 (+5)
C Spez. Füllgrad	0,0625 kg*min/h	222 (0)	597 (+8)	3,4 (-39)
	0,15 kg*min/h	223 (0)	514 (-7)	7,7 (+38)
D Schneckendrehzahl	100 min ⁻¹	202 (-9)	346 (-37)	3,2 (-43)
	520 min ⁻¹	240 (+8)	737 (+33)	7,9 (+41)
E Vakuumentgasung	Vakuum nein	221 (0)	540 (-2)	5,4 (-4)
	Vakuum ja	223 (0)	564 (+2)	5,9 (+5)
F Atm. Rückwärtsent- gasung	ARE nein	223 (0)	559 (+1)	5,5 (-2)
	ARE ja	222 (0)	546 (-1)	5,8 (+4)
Mittelwert aller Messungen		222	553	5,6

Die Erhöhung der Schneckendrehzahl und ein erhöhter Spezifischer Füllgrad bewirken eine Erhöhung des Drucks vor der Düse um 41 bzw. 38% im Vergleich zu den Mittelwerten aller Messungen. Durch die Verwendung der Schneckenkonfiguration PP-KB steigt der Druck um 11% im Vergleich zum Mittelwert an.

Abbildung 5-2 veranschaulicht die in Abbildung 5-1 aufgezeigte Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und Schneckendrehzahl auf den SME und die Schmelztemperatur.

Bei einer Schneckendrehzahl von 100 min⁻¹ liegen die SME-Werte von niedrigem und hohem Spezifischen Füllgrad sehr nahe beieinander. Bei der hohen Drehzahl von 520 min⁻¹ ist der Einfluss des Spezifischen Füllgrades jedoch höher. Aufgrund des niedrigen Spezifischen Füllgrades, welcher einhergeht mit niedrigerem Materi-

aldurchsatz, wird ungleich mehr Energie durch die Extruderschnecken in das System eingebracht. Dieser erhöhte Energieeintrag ist auch anhand der Schmelzetemperatur festzustellen. Bei niedriger Drehzahl und niedrigem Spezifischen Füllgrad liegt eine geringere Schmelzetemperatur vor, als bei niedriger Drehzahl und hohem Spezifischen Füllgrad. Dieses Verhältnis kehrt sich allerdings bei der Compoundierung mit hoher Schneckendrehzahl um. Bei einer Drehzahl von 520 min^{-1} ist die Schmelzetemperatur bei niedrigem Spezifischen Füllgrad um durchschnittlich 7°C höher.

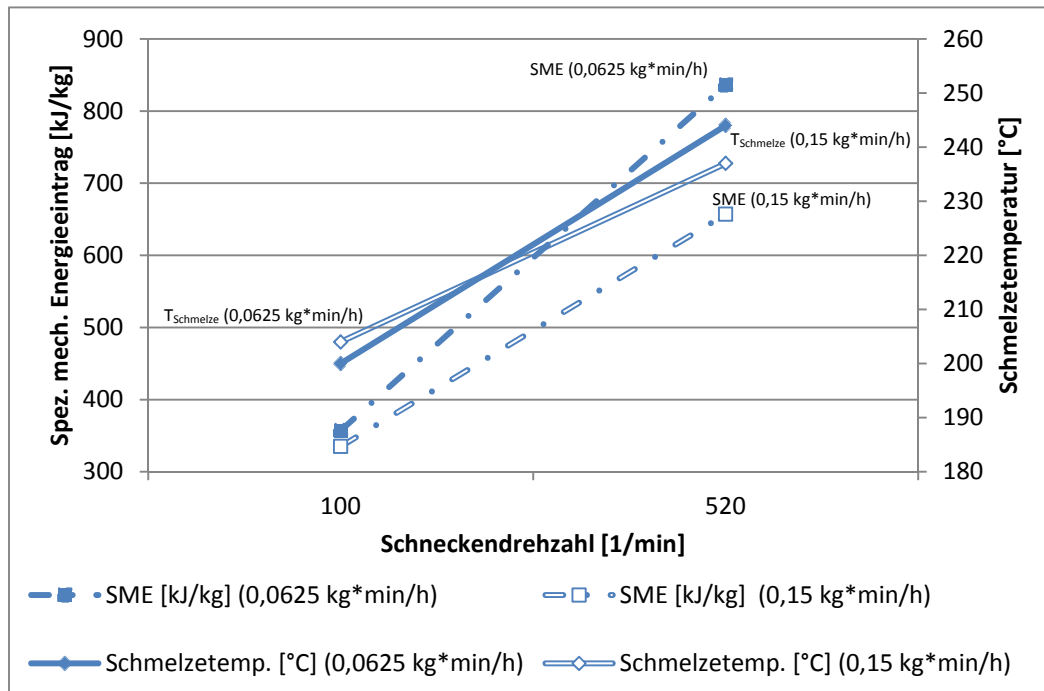


Abbildung 5-2: Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und Schneckendrehzahl auf SME und Schmelzetemperatur für PP-CF-Compounds

Die Betrachtung der Einflüsse der Faktoren und Wechselwirkungen auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen legt nahe, dass zwei Faktoren die Compoundierung wesentlich beeinflussen:

- Schneckendrehzahl
- Spezifischer Füllgrad

Des Weiteren sind die Wechselwirkungen der beiden Faktoren mit zu berücksichtigen. Zusätzlich hat auch die Schneckenkonfiguration einen Einfluss auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen.

5.1.1.2 Einflüsse auf materialtechnische Zielgrößen

Die Einflüsse der untersuchten Faktoren auf die materialtechnischen Zielgrößen sind in Tabelle 5-2 beschrieben. Darin ist jeweils der Faktor mit minimalem und maximalem Messwert genannt, der bei den Untersuchungen den größten Einfluss auf die jeweilige materialtechnische Zielgröße zeigt. Des Weiteren sind auch der zugehörige Mittelwert aller Messungen und die mittlere Standardabweichung eingetragen. Der B_{kor} -Wert gibt die Güte des berechneten Modells⁹ an (siehe Kapitel 2.5.2).

Die Ergebnisse zeigen, dass die materialtechnischen Zielgrößen Zugfestigkeit, Zugmodul, Zugdehnung, Biegefestigkeit, Biegemodul, Biegedehnung und der HDT/A-Wert nur in sehr geringem Maße von den untersuchten Faktoren beeinflusst werden.

Die Differenz zwischen den jeweiligen Minimal- und Maximal-Werten ist ähnlich hoch wie die Standardabweichungen der Messungen und das Bestimmtheitsmaß der berechneten Modelle ist bei allen genannten Zielgrößen deutlich unter 80%. Dies legt den Schluss nahe, dass die Zielgrößen nicht von den variierten Faktoren abhängig sind. Die Schlagzähigkeit, der L^* und b^* -Wert sowie die Viskosität werden durch die Variation der untersuchten Faktoren stärker beeinflusst. Zwar liegt die Modellgüte der Abhängigkeiten für die Schlagzähigkeit auch nur bei 56,6%, der Einfluss der Faserfeuchtigkeit erscheint hier jedoch relativ hoch, weshalb diese Zielgröße näher betrachtet werden soll. Die Viskosität, der L^* -Wert und der b^* -Wert weisen hohe Modellgüten und hohe Unterschiede bei der Varianz der Faktoren, im Vergleich zur mittleren Standardabweichung, auf. Deshalb sollen auch diese Zielgrößen genauer untersucht werden.

In Abbildung 5-3 sind die relativierten Werte der Schlagzähigkeit, Viskosität, L^* -Werte und b^* -Werte in Abhängigkeit der variierenden untersuchten Faktoren dargestellt. Die Schneckenkonfiguration beeinflusst die L^* - und b^* -Werte. Bei Verwendung der Knetblock-Schnecke werden die Compounds im Vergleich zur KB-MPE-Schnecke weniger verfärbt. Der L^* -Wert liegt um ca. 4% höher und der b^* -Wert um ca. 5% niedriger als der Durchschnittswert aller Compounds. Ein höherer L^* -Wert bedeutet höhere Helligkeit und ein niedrigerer b^* -Wert weniger Gelbfärbung.

Die Faserfeuchtigkeit beeinflusst die Schlagzähigkeit der hergestellten Compounds. Bei der Verwendung von getrockneten Cellulosefasern ist die Schlagzähigkeit um ca. 18% geringer als bei der Verwendung von Cellulosefasern mit einem Feuchtegehalt von 10 wt.-%. Die Compounds, die mit feuchten Cellulosefasern hergestellt wurden, weisen weniger Verfärbung, also höhere L^* -Werte und niedrigere b^* -Werte, auf. Der Spezifische Füllgrad beeinflusst die Viskosität und die Farbwerte. Die Viskosität des Compounds steigt mit höherem Spezifischen Füllgrad an. Die Verfärbung des

⁹ Bei Annahme einer linearen Abhängigkeit der Zielgröße von den Faktoren bzw. Wechselwirkungen

Compounds wird durch die Verwendung des hohen Spezifischen Füllgrads ebenfalls verringert (höherer L^* -Wert, geringerer b^* -Wert). Die Faktoren Vakuummentgasung und Atmosphärische Rückwärtsentgasung beeinflussen die materialtechnischen Zielgrößen nicht.

Tabelle 5-2: Übersicht der maximalen Einflüsse der Faktoren auf die materialtechnischen Zielgrößen für PP-CF-Compounds (angegeben sind jeweils die Werte für den stärksten Einflussfaktor, A= Schneckenkonfiguration, B= Faserfeuchtigkeit, C= Spezifischer Füllgrad, D= Schneckendrehzahl)

Materialtechnische Zielgrößen	Faktor	Minimum	Maximum	Differenz	Standardabweichung	Mittelwert	$B_{kor.} [\%]$
Zugfestigkeit [MPa]	D	25,9	26,2	0,3	0,2	26,1	31,8
Zugmodul [MPa]	B	1768	1787	19	24	1777	65,9
Zugdehnung [%]	A	3,49	3,64	0,15	0,06	3,56	24,7
Biegefestigkeit [MPa]	A	35,9	36,4	0,5	0,3	36,2	47,4
Biegemodul [MPa]	A	1656	1688	32	27	1672	15,0
Biegedehnung [%]	A	5,51	5,54	0,03	0,04	5,52	6,6
Schlagzähigkeit [kJ/m ²]	B	30,0	35,1	5,1	2,4	32,6	56,6
HDT/A-Wert [°C]	C	59,0	59,5	0,5	0,5	59,3	16,1
L*-Wert [/]	C	61,7	69,2	7,5	0,3	65,7	97,7
b*-Wert [/]	C	16,0	22,1	6,1	0,4	18,9	92,6
Viskosität (1000 s ⁻¹) [Pa*s]	C	66,7	71,9	5,2	- ¹⁰	69,5	92,7

¹⁰ An dieser Stelle ist keine Standardabweichung angegeben, da es sich um eine Einfachbestimmung handelt.

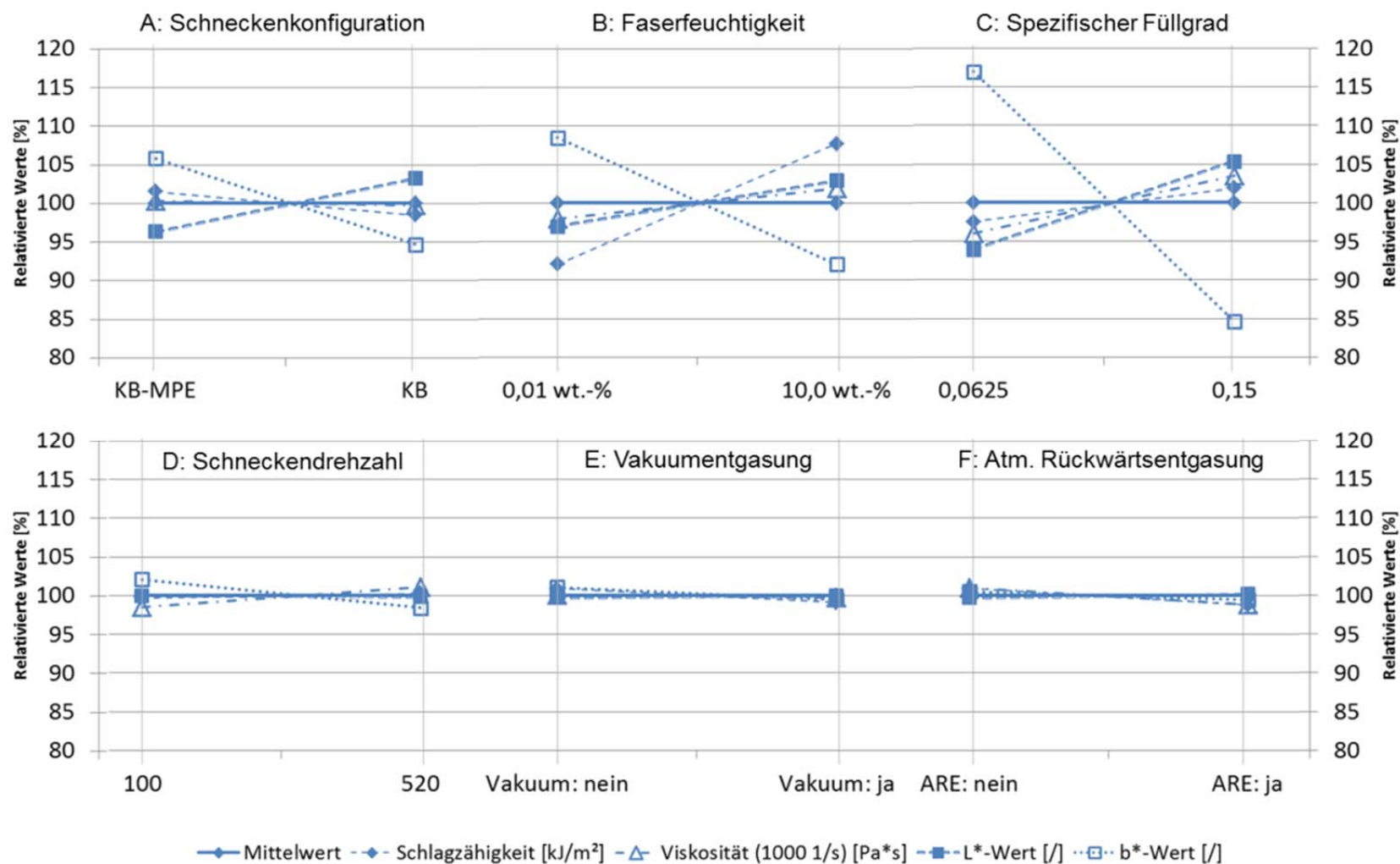


Abbildung 5-3: Einflüsse der Faktoren A bis F auf Schlagzähigkeit, Viskosität, L*- und b*-Wert für PP-CF-Compounds

5.1.2 PLA-Cellulosefaser-Compounds

5.1.2.1 Einflüsse auf verfahrenstechnische Zielgrößen

Die standardisierten Effekte auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen der untersuchten Faktoren und Wechselwirkungen sind in Abbildung 5-4 aufgezeigt.

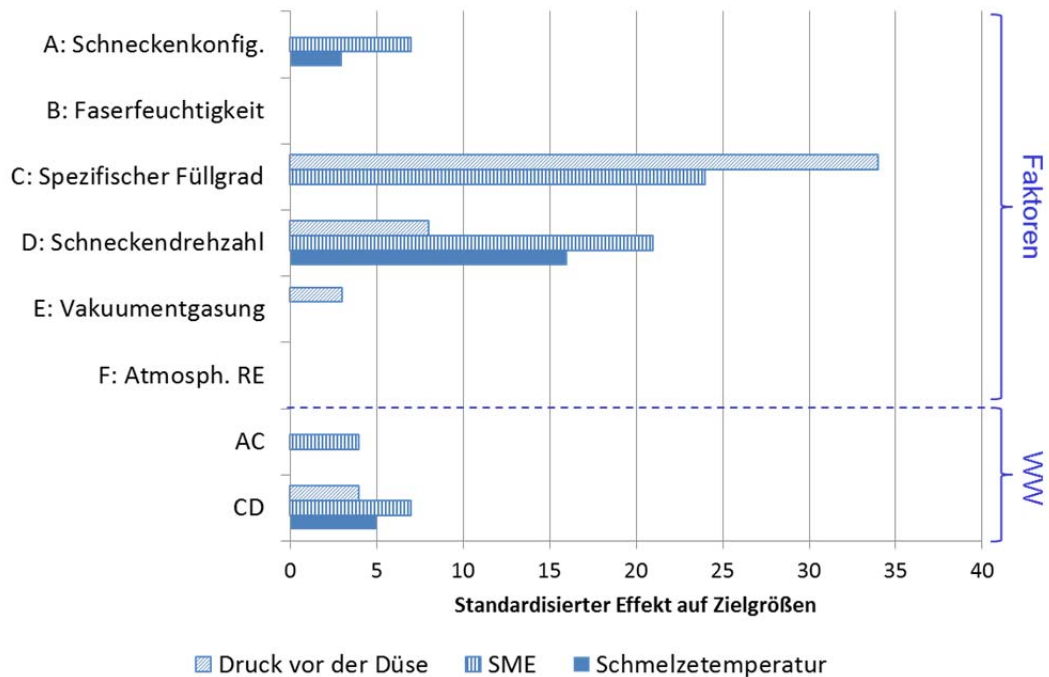


Abbildung 5-4: Standardisierte Effekte auf verfahrenstechnische Zielgrößen der Faktoren und Wechselwirkungen für PLA-CF-Compounds

Die Schmelztemperatur wird vorrangig von der Schneckendrehzahl beeinflusst, die Schneckenkonfiguration hat einen deutlich geringeren Einfluss, die Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und der Schneckendrehzahl (CD) ist ebenfalls einflussgebend. Der Spezifische Mechanische Energieeintrag (SME) wird in ungefähr gleichem Maße von dem Spezifischen Füllgrad und der Schneckendrehzahl sowie von der Wechselwirkung der beiden Faktoren (CD) beeinflusst. Die Schneckenkonfiguration sowie die Wechselwirkung AC beeinflussen den SME in geringerem Maße. Der Druck vor der Düse wird maßgeblich durch den Spezifischen Füllgrad bestimmt, die Schneckendrehzahl, die Vakuumentgasung und die Wechselwirkung CD haben aber auch Anteil daran.

In Tabelle 5-3 sind die Haupteffekte der Faktoren auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen für die PLA-Cellulosefaser-Compounds angegeben.

Für die Schmelztemperatur zeigt sich, dass die Faktoren Schneckenkonfiguration (A), Faserfeuchte (B) und Spezifischer Füllgrad (C) nur einen sehr geringen bzw. keinen Einfluss haben. Die Schmelztemperatur bleibt durch die Variation dieser Faktoren nahezu unverändert. Durch die Erhöhung der Schneckendrehzahl von 200 auf 500 min⁻¹ wird die Schmelztemperatur von durchschnittlich 211°C

auf 242°C erhöht. Dies entspricht einem Anstieg vom Gesamtmittelwert aller Messungen von 7%. Durch die Variation der Vakuumentgasung und der atmosphärischen Rückwärtsgasung bleibt die Schmelzetemperatur unbeeinflusst.

Tabelle 5-3: Haupteffekte der Faktoren auf verfahrenstechnische Zielgrößen für PLA-CF-Compounds (Datenmittelwerte), in Klammern ist die jeweilige prozentuale Abweichung vom Mittelwert angegeben

Faktoren	Faktorstufen	Schmelze- temperatur [°C]	Spez. Mech. Energieeintrag (SME) [kJ/kg]	Druck vor der Düse [bar]
A Schnecken- geometrie	KB-MPE	228 (+1)	674 (+8)	13,2 (-9)
	KB	224 (-1)	586 (-7)	15,5 (+7)
B Faserfeuchtigkeit	0,1 wt.-%	228 (+1)	606 (-3)	15,3 (+6)
	10,0 wt.-%	224 (-1)	650 (+4)	13,5 (-7)
C Spez. Füllgrad	0,0667 kg*min/h	226 (0)	758 (+21)	7,0 (-52)
	0,2667 kg*min/h	225 (0)	476 (-24)	23,0 (+59)
D Schneckendrehzahl	200 min ⁻¹	211 (-7)	506 (-19)	13,3 (-8)
	500 min ⁻¹	242 (+7)	764 (+22)	15,7 (+8)
E Vakuumentgasung	Vakuum nein	223 (-1)	629 (0)	13,8 (-5)
	Vakuum ja	229 (+1)	624 (0)	15,1 (+4)
F Atm. Rückwärtsgasung	ARE nein	224 (-1)	623 (-1)	14,3 (-1)
	ARE ja	227 (+1)	631 (+1)	14,6 (+1)
Mittelwert aller Messungen		226	627	14,5

Der SME wird bei einer Zunahme des Spezifischen Füllgrades um 24% im Vergleich zum Mittelwert aller Messungen herabgesenkt, die Drehzahlerhöhung bewirkt dagegen eine Erhöhung des SME um 22% im Vergleich zum Mittelwert aller Messungen. Durch die Verwendung der Schneckenkonfiguration PLA-KB kann der SME im Vergleich zur anderen untersuchten Schneckenkonfiguration PLA-KB-MPE im Mittel um 15% gesenkt werden. Die Zugabe von feuchten Cellulosefasern in den Prozess bewirkt eine Erhöhung des SME um 4% im Vergleich zu den Mittelwerten aller Messungen, die anderen Faktoren zeigen keine Auswirkung auf den SME.

Die Erhöhung des Spezifischen Füllgrades bewirkt eine Verdreifachung des Drucks vor der Düse im Vergleich zum niedrigen Spezifischen Füllgrad. Die hohe Faktorstufe bei der Schneckenkonfiguration (PLA-KB) und die hohe Faktorstufe bei der Drehzahl bewirken einen Anstieg des Drucks um 7 bzw. 8% im Vergleich zum Mittelwert aller Messungen. Wenn keine Vakuumentgasung verwendet wird, ist der Druck um 5% geringer als im Mittel, werden feuchte Cellulosefasern verwendet sinkt der Druck ebenfalls um 7%.

Die Einflüsse der Wechselwirkungen von Spezifischem Füllgrad und der Schneckendrehzahl auf den Spezifischen Mechanischen Energieeintrag (SME) und die Schmelzetemperatur werden in Abbildung 5-5 veranschaulicht.

Der SME bei niedrigem Spezifischen Füllgrad und einer Drehzahl von 200 min^{-1} ist 1,5-mal höher, als der SME bei hohem Spezifischen Füllgrad und der gleichen Drehzahl. Bei Erhöhung der Drehzahl auf 500 min^{-1} ist der Unterschied noch höher. Der SME des niedrigen Spezifischen Füllgrades ist 1,6-mal höher (918 kJ/kg) als der des hohen Füllgrades (560 kJ/kg).

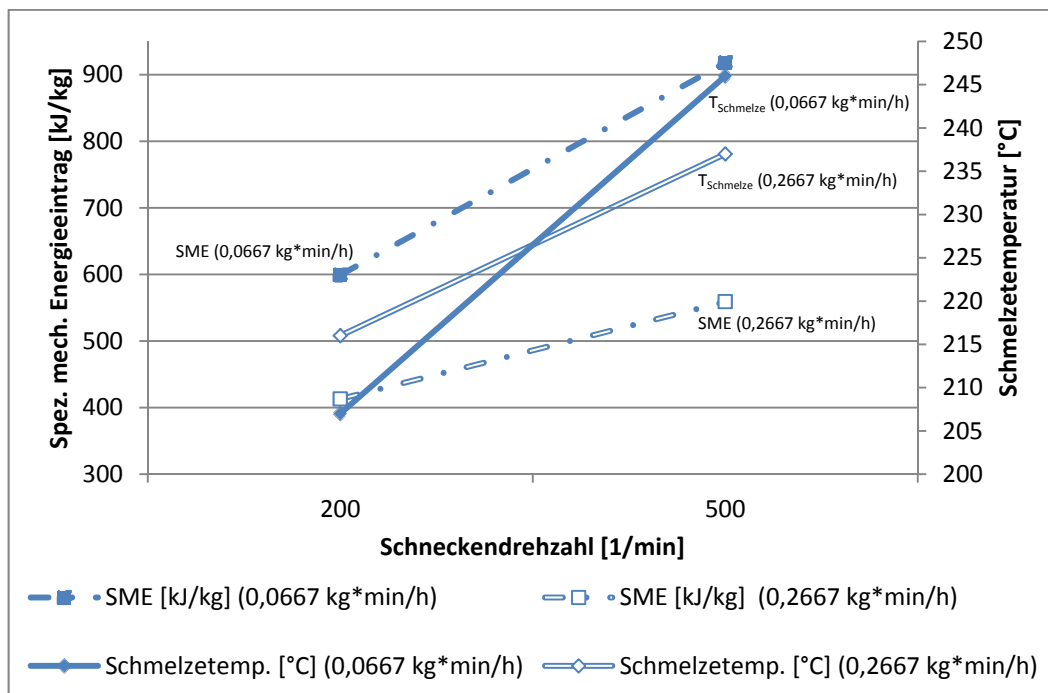


Abbildung 5-5: Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und Schneckendrehzahl auf SME und Schmelzetemperatur für PLA-CF-Compounds

Die Schmelzetemperatur bei niedrigem Spezifischen Füllgrad und niedriger Drehzahl liegt mit 207°C deutlich unter der Schmelzetemperatur des hohen Füllgrades (216°C). Bei Erhöhung der Drehzahl kehrt sich dieses Verhältnis um. Die Schmelzetemperatur für den hohen Spezifischen Füllgrad liegt nun bei 237°C , der des niedrigen Spezifischen Füllgrades bei 246°C .

Die Betrachtung der Einflüsse der Faktoren und Wechselwirkungen auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen legt nahe, dass folgende zwei Faktoren die Compoundierung im Wesentlichen beeinflussen:

- Schneckendrehzahl
- Spezifischer Füllgrad

Des Weiteren sind die Wechselwirkungen der beiden Faktoren mit zu berücksichtigen. Zusätzlich haben auch die Schneckenkonfiguration, die Faserfeuchtigkeit und die Vakuumentgasung einen Einfluss auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen.

5.1.2.2 Einflüsse auf materialtechnische Zielgrößen

Die Einflüsse der untersuchten Faktoren für die PLA-Cellulosefaser-Compoundierung auf die materialtechnischen Zielgrößen sind in Tabelle 5-4 beschrieben. Darin ist jeweils der Faktor mit minimalem und maximalem Messwert genannt, der bei den Untersuchungen den größten Einfluss auf die jeweilige materialtechnische Zielgröße zeigt. Des Weiteren sind auch der zugehörige Mittelwert aller Messungen und die mittlere Standardabweichung eingetragen. Der B_{kor} -Wert gibt die Güte des berechneten Modells¹¹ an (siehe Kapitel 2.5.2).

Die Ergebnisse zeigen, dass die materialtechnischen Zielgrößen Zugfestigkeit, Zugmodul, Zugdehnung, Biegefestigkeit, Biegemodul, Biegedehnung, Schlagzähigkeit und der HDT/A-Wert nur in sehr geringem Maße bzw. nicht von den untersuchten Faktoren beeinflusst werden. Die mittleren Standardabweichungen sind höher oder gleich hoch wie die gemessenen maximalen Effekte auf die Zielgrößen und/oder die Qualität des auf Grundlage der Messdaten berechneten Modells ist geringer als 80%. Dies lässt ebenfalls auf eine nicht systematische Abhängigkeit der Messwerte von den Faktoren schließen.

Die L^* - und b^* -Werte werden durch die Variation der Faktoren beeinflusst. Den größten Einfluss hat hier der Faktor Spezifischer Füllgrad (C). Der Melt Flow Rate als Maß für die Viskosität wird ebenfalls am stärksten vom Spezifischen Füllgrad beeinflusst. Die Güte der Modelle für die drei beeinflussten Zielgrößen liegt zwischen 91,7 und 98,6% und lässt auf eine systematische Abhängigkeit schließen.

In Abbildung 5-6 sind die Einflüsse der Faktoren auf die materialtechnischen Zielgrößen L^* -Wert, b^* -Wert und Melt Flow Rate (MFR) dargestellt. Die Schneckenkonfiguration beeinflusst den b^* -Wert. Dieser wird durch die Verwendung der PLA-KB-Schnecke um ca. 4% herabgesenkt. Die Erhöhung der Faserfeuchtigkeit auf 10 wt.-% senkt den b^* -Wert ebenfalls um ca. 4% herab.

¹¹ Bei Annahme einer linearen Abhängigkeit der Zielgröße von den Faktoren bzw. Wechselwirkungen.

Tabelle 5-4: Übersicht der maximalen Einflüsse der Faktoren auf die materialtechnischen Zielgrößen für PLA-CF-Compounds (angegeben sind jeweils die Werte für den stärksten Einflussfaktor, A= Schneckenkonfiguration, B= Faserfeuchtigkeit, C= Spezifischer Füllgrad, D= Schneckendrehzahl)

Materialtechnische Zielgrößen	Faktor	Minimum	Maximum	Differenz	Standardabweichung	Mittelwert	$B_{kor.} [\%]$
Zugfestigkeit [MPa]	C	59,6	60,5	0,6	0,4	60,1	58,0
Zugmodul [MPa]	D	4591	4626	35	79	4609	15,1
Zugdehnung [%]	A, C	2,29	2,33	0,04	0,04	2,31	53,4
Biegefestigkeit [MPa]	B	85,8	88,0	2,2	1,2	86,8	55,3
Biegemodul [MPa]	B	4464	4502	38	58	4482	32,8
Biegedehnung [%]	B, D	2,19	2,23	0,04	0,06	2,21	37,6
Schlagzähigkeit [kJ/m ²]	C	11,3	11,6	0,3	0,5	11,5	16,9
HDT/A-Wert [°C]	A, B	54,3	54,8	0,5	0,2	54,6	63,6
L*-Wert [/]	C	60,1	71,8	11,7	0,6	65,6	98,6
b*-Wert [/]	C	14,2	22,8	8,6	0,4	18,8	94,9
Melt Flow Rate [g/10min] ¹²	C	10,9	12,4	1,5	0,3	11,7	91,7

¹² Siehe Ausführungen hierzu in Kapitel 4.2.1, S. 53

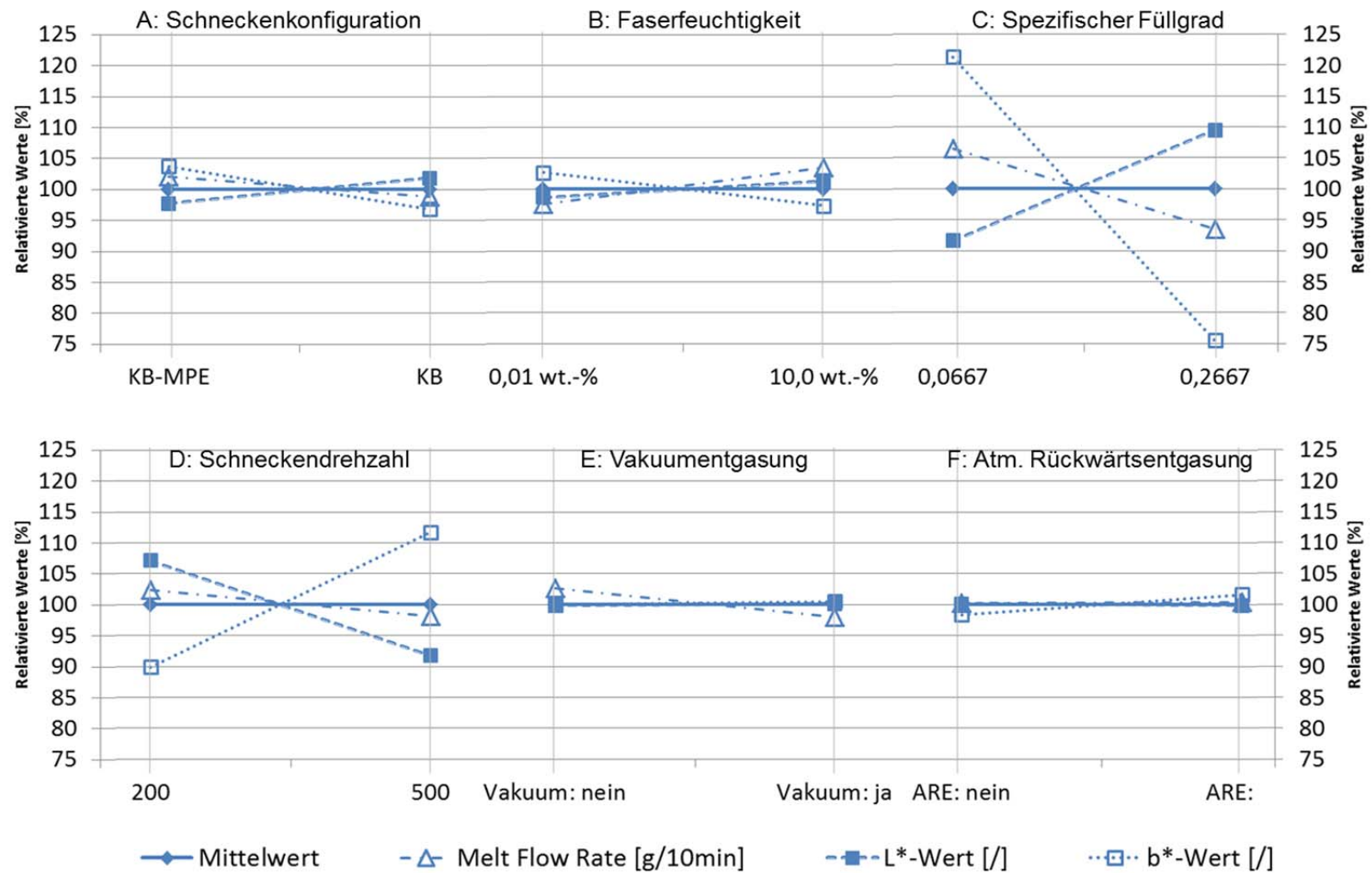


Abbildung 5-6: Einflüsse der Faktoren A bis F auf Melt Flow Rate, L*- und b*-Wert für PLA-CF-Compounds

Der Spezifische Füllgrad hat Einfluss auf alle drei betrachteten Zielgrößen. Der L^* -Wert wird bei Erhöhung des Füllgrades ebenfalls erhöht (ca. 10%), der b^* -Wert wird herabgesenkt (ca. 25%). Der MFR wird bei Erhöhung des Spezifischen Füllgrades um ca. 7% im Vergleich zu den mittleren Werten herabgesenkt. Die Schneckendrehzahl wirkt sich maßgeblich auf die Farbwerte (L^* - und b^* -Wert) aus. Mit Anstieg der Schneckendrehzahl steigt auch der b^* -Wert an bzw. sinkt der L^* -Wert. Die weiteren untersuchten Faktoren Vakuumentgasung und Atmosphärische Rückwärtsentgasung beeinflussen die Zielgrößen nicht.

5.1.3 Diskussion der Ergebnisse zur Identifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter

5.1.3.1 Diskussion zu den verfahrenstechnischen Zielgrößen

Die verfahrenstechnischen Zielgrößen Schmelzetemperatur, Spezifischer Mechanischer Energieeintrag und Druck vor der Düse werden sowohl bei der PP-, als auch bei der PLA-Cellulosefaser-Compoundierung in erster Linie durch den Spezifischen Füllgrad und die Schneckendrehzahl sowie deren Wechselwirkung beeinflusst. Der Anstieg des SME mit zunehmender Drehzahl bzw. abnehmendem Spezifischen Füllgrad ist bekannt und in der Literatur beschrieben (vgl. [56] [119] [130]). Die Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und Drehzahl wird ebenfalls erläutert.

Grund für die Wechselwirkung ist, dass sich bei gleicher Drehzahl und niedrigerem Spezifischen Füllgrad eine ähnlich hohe über die Schnecke eingetragene mechanische Energie auf weniger Material verteilt, als bei einem hohen Spezifischen Füllgrad. Somit ist der Eintrag, bezogen auf die Menge, größer. Dadurch entstehen in der Folge höhere Schmelzetemperaturen am Düsenaustritt. Bei niedrigeren Drehzahlen ergibt sich ein geringerer Effekt, da hier anteilig mehr mechanische Energie zum Aufschmelzen der Matrix aufgewendet werden muss. SCHULER gibt dagegen an, dass der Einfluss der Schneckendrehzahl auf den SME höher sei, als der Einfluss des Materialdurchsatzes (in diesem Fall gleichzusetzen mit dem Spezifischen Füllgrad) [130]. Für die Compoundierung des PP mit Cellulosefasern trifft diese Aussage zu, jedoch ist bei der PLA-Cellulosefaser-Compoundierung die Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und Drehzahl deutlich geringer.

Der Grund für dieses unterschiedliche Verhalten kann der Unterschied im Cellulosefaseranteil der Compounds sein. Da ca. 80-90% der zugeführten Energie bei der Extrusion für das Aufschmelzen verwendet wird [51], ist der Anteil beim PP am Gesamtenergie-Bedarf höher, als bei der PLA-Compoundierung. Der volumetrische Faseranteil liegt bei der PLA-Compoundierung deutlich höher. Somit muss anteilig weniger PLA aufgeschmolzen werden, wodurch automatisch auch der Anteil der Aufschmelzenergie am Gesamtenergie-Bedarf herabgesenkt wird. Weiterhin hat das PLA eine spezifische Wärmekapazität von $1,15 \text{ J/g} \cdot \text{K}$ [164], die

von PP beträgt $2,0 \text{ J/g} \cdot \text{K}$ [105]. Das bedeutet, dass zum Aufschmelzen der gleichen Menge PP eine größere Energiezufuhr notwendig ist. Die Kombination dieser Tatsachen führt zu der deutlich geringeren Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und Drehzahl bei der Herstellung der PLA-Compounds.

Der Druck vor der Düse wird in erster Linie von der Schneckendrehzahl und vom Spezifischen Füllgrad beeinflusst. Bei geringer Schneckendrehzahl (100 min^{-1}) in Verbindung mit einem niedrigen Spezifischen Füllgrad ($0,0625 \text{ kg} \cdot \text{min/h}$) kommt es bei der PP-Cellulosefaser-Compoundierung zu Druckschwankungen, die dazu führen können, dass die Schmelzestränge abreißen. Ein hoher gleichmäßiger Druck ist demnach zu bevorzugen. Weiterhin hat sich eine geringfügige Abhängigkeit des Drucks vor der Düse von der Feuchtigkeit der Cellulosefasern gezeigt. Bemerkenswert ist hierbei, dass der Druck bei der Compoundierung mit feuchten Fasern bei den PP-CFT (10 wt.-%) im Mittel um ca. 5% ansteigt, während dieser bei den PLA-CFT im Mittel um ca. 7% abnimmt. Der Grund hierfür könnte sein, dass das PLA im Vergleich zum PP mehr Feuchtigkeit aufnimmt und dadurch die Viskosität gesenkt wird. Das PP dagegen nimmt keine Feuchtigkeit auf und durch die kühlende Wirkung des Wassers in der Schmelze (siehe Ausführungen S. 80) steigt in der Folge die Viskosität und somit der Druck vor der Austrittsdüse an.

Der Vergleich der standardisierten Effekte bei den PP- und PLA-CF-Compounds für die verfahrenstechnischen Zielgrößen (Abbildung 5-1, S. 64 und Abbildung 5-4, S. 72) zeigt, dass das Verhältnis der Effekte von Spezifischem Füllgrad und Drehzahl und der Wechselwirkungen beider grundsätzlich gleich ist. Es liegt jedoch eine unterschiedliche Ausprägung bei den beiden Systemen vor. Bei den PLA-CF Compounds ist der Effekt des Spezifischen Füllgrads auf den Druck vor der Düse und den SME um 1,2- bzw. 1,4-mal höher, als bei den PP-CF-Compounds. Bei den PP-CF-Compounds ergibt sich wiederum ein dreimal höherer Einfluss der Schneckendrehzahl auf den Druck vor der Düse, den SME und die Schmelzetemperatur, als bei den PLA-CF-Compounds. Der Grund für die unterschiedliche Ausprägung ist bei den verschiedenen verwendeten Minus- und Plus-Stufen (Tabelle 4-1, S. 52) zu finden. Aufgrund der unterschiedlichen Eigenschaften der Matrixsysteme bei der Compoundierung wurden unterschiedliche Drehzahlen und Spezifische Füllgrade gewählt. Die unterschiedliche Ausprägung der Effekte kann also auf die grundsätzlich verschiedenen Möglichkeiten der Compoundierung von PP- und PLA-CF-Systemen zurückgeführt werden.

Interessant ist die Tatsache, dass die Verwendung der scherintensiveren Knetblock-Schnecken (PP-KB, PLA-KB) im Vergleich zu den Schneckenkonfigurationen mit weniger Scherwirkung (PP-KB-MPE, PLA-KB-MPE) einen geringeren Spezifischen Mechanischen Energieeintrag bewirkt. Genauere Untersuchungen hierzu zeigen, dass durch die geringere Scherung in der Aufschmelzzone geringere Schmelzetemperaturen erzielt werden. Diese niedrigeren Temperaturen bewir-

ken jedoch eine deutlich höhere Scherviskosität der Schmelze, wodurch mehr mechanische Energie aufgebracht werden muss, um die Cellulosefasern einzumischen [79].

5.1.3.2 Diskussion zu den materialtechnischen Zielgrößen

Die Verfärbung der Cellulosefasern (L^* - und b^* -Wert) wird maßgeblich vom Spezifischen Füllgrad beeinflusst. Die Drehzahl ist nur in deutlich geringerem Anteil für die Ausprägung der L^* - und b^* -Werte verantwortlich. Ein wichtiger Punkt ist hier, dass die Verfärbung des Compounds nicht unmittelbar mit der Schmelztemperatur zusammenhängt. Bei einem Spezifischen Füllgrad von $0,2667 \text{ kg} \cdot \text{min}/\text{h}$ und einer Drehzahl von 500 min^{-1} wird eine Schmelztemperatur bei der PLA-Cellulosefaser-Compoundierung von 237°C erreicht. Die Verarbeitungstemperatur von naturfaserverstärkten Kunststoffen sollte allerdings nach Aussage verschiedener Autoren 200°C [55] [90] [122] bzw. 220°C [120] nicht überschreiten, da die Naturfasern sonst durch die thermische Degradation stark geschädigt werden. HARGITAI bemerkt zusätzlich, dass der thermische Abbau von Naturfasern zudem zeitabhängig ist [55]. Die Ergebnisse (L^* -Wert = 71,9, b^* -Wert = 16,2) zeigen, dass bei einer solch hohen Temperatur von 237°C geringfügig verfärbte und damit thermisch wenig geschädigte Compounds hergestellt werden können, wenn die Verarbeitungszeit durch die Wahl eines hohen Spezifischen Füllgrades bei gleichzeitig hoher Drehzahl entsprechend gering ist.

Sowohl bei der Herstellung der PP-, als auch der PLA-Cellulosefaser-Compounds ist ein Einfluss der Faserfeuchtigkeit auf die L^* - und b^* -Werte festzustellen. Bei erhöhter Feuchtigkeit ergibt sich eine geringere Verfärbung. Die Ursache hierfür liegt in der Verdampfungsenthalpie des Wassers. Diese ist verhältnismäßig hoch und liegt bei 2257 kJ/kg . Die Wärmekapazität des Wassers beträgt $4,19 \text{ kJ/kg} \cdot \text{K}$ [63]. Für die Erwärmung von 20°C Raumtemperatur auf Siedetemperatur und anschließende Verdampfung von 1 kg Wasser ist demnach eine Energiezufuhr von 2592 kJ notwendig. Anhand der Werte für die Schmelztemperatur kann eine Auswirkung der Faserfeuchtigkeit jedoch nicht festgestellt werden. Die Schmelztemperatur bei der Verwendung feuchter CF sinkt lediglich um 1% im Vergleich zu den Mittelwerten aller Compoundierungen.

Die Viskosität der Schmelzen steigt sowohl bei den PP-Cellulosefaser-Compounds, als auch bei den PLA-Cellulosefaser-Compounds mit steigendem Spezifischem Füllgrad an. Durch die geringere Energiezufuhr pro extrudierte Masse bei erhöhtem Füllgrad findet hier eine geringere thermische Schädigung der Cellulosefasern (siehe Ausführungen zu den Farbwerten) und offensichtlich auch des Polymers statt. Die höhere Viskosität kann durch geringere Einkürzung der Polymerketten durch thermische Schädigung erklärt werden [111].

Die Erhöhung der Schlagzähigkeit der PP-Cellulosefaser-Compounds bei Einarbei-

tung der feuchten Fasern ist sehr bemerkenswert. Die Erhöhung beträgt zwar nur 5% im Vergleich zum Mittelwert der Messungen, ist aber deutlich größer als die mittlere Standardabweichung und wird deshalb genauer untersucht (siehe Box-Behnken-Versuchsplan, Kapitel 5.2.1). Der Grund für diese Erhöhung der Schlagzähigkeit könnte darin liegen, dass die Fasern auch im Compound eine höhere Feuchtigkeit behalten, da sie vom Polypropylen umschlossen werden und die Feuchtigkeit während der Trocknung nicht entweichen kann. Feuchte Fasern zeichnen sich durch eine höhere Flexibilität aus [108], was die Ursache für die höhere Schlagzähigkeit des Compounds sein könnte. BLEDZKI und FARUK haben jedoch gezeigt, dass die Schlagzähigkeit von Holzfaser-PP-Compounds bei höherem Feuchtigkeitsanteil der Prüfkörper nicht signifikant verändert wird [17]. Der Einfluss der Feuchtigkeit der Cellulosefasern vor der Verarbeitung wird trotzdem genauer untersucht.

Auffällig ist, dass die meisten der untersuchten materialtechnischen Zielgrößen von der Faktorvariation nicht beeinflusst werden. Einzig die Zielgröße Schlagzähigkeit bei den PP-Cellulosefaser-Compounds wird beeinflusst. Ansonsten werden bei den Zielgrößen, die an spritzgegossenen Normprüfkörpern ermittelt werden, keine signifikanten Veränderungen festgestellt. Es liegt also der Verdacht nahe, dass durch die sehr hohen Drücke und Scherraten bei der spritzgießtechnischen Verarbeitung evtl. vorhandene Effekte egalisiert werden. Die Unterschiede in den Compouneigenschaften nach der Extrusion mit variierten Faktorstufen sind nach dieser Überlegung zu gering, um sie in den Eigenschaften des fertigen Bauteils (hier der Normprüfkörper 1A) wiederzufinden. Das würde bedeuten, dass es deutlich höhere Einflüsse beim Verspritzen der Cellulosefaser-Compounds gibt, als bei der Extrusion. Ein Grund können u.a. die sehr viel höheren Scherraten sein, die beim Verspritzen erreicht werden. Bei der Extrusion ergeben sich Scherraten-Spitzen von ca. 6.000 s^{-1} (bei $D_a/D_i=1,55$) [157], beim Spritzgießen dagegen von bis zu 50.000 s^{-1} [71]. Um die Einflüsse (z.B. Einspritzgeschwindigkeit, Nachdruck, Werkzeugtemperatur, etc.) auf cellulosefaserverstärkte Kunststoffe beim Spritzgießen zu untersuchen, bedarf es einer gesonderten Versuchsreihe.

Aus den Einflüssen der untersuchten Faktoren auf die materialtechnischen Zielgrößen für die Compoundierung der Cellulosefaser-Compounds lässt sich demnach ableiten, dass die Verwendung einer Schneckenkonfiguration mit höherer Scherrate (Knetblock-Schnecke), die Anwendung eines möglichst hohen Spezifischen Füllgrades bei gleichzeitig niedriger Schneckendrehzahl sowie die Eincompoundierung von feuchten Cellulosefasern für eine schonende Compoundierung zuträglich sind. Weiterhin gilt es auf einen gleichmäßigen Druckaufbau zu achten.

Die Faktoren Vakuumentgasung und Atmosphärische Rückwärtsentgasung haben keinen nennenswerten Einfluss auf die untersuchten Zielgrößen. Zumindest in

Wechselwirkung mit der Cellulosefaser-Feuchtigkeit waren hier Einflüsse zu erwarten. Bei der Einarbeitung der feuchten Cellulosefasern in Kombination mit der nicht vorhandenen atmosphärischen Rückwärtsentgasung und ohne Vakuumentgasung wäre die Feuchtigkeit nur sehr mäßig aus dem Prozess zu entfernen. Tatsächlich konnten aber keine negativen Einflüsse auf die materialtechnischen Zielgrößen bei der Einstellung dieser Stufenwerte ermittelt werden. Während der Versuche wurde jedoch festgestellt, dass ohne Atmosphärische Rückwärtsentgasung eine zunehmende Entgasung über die Zweischnellen-Seitenfüttereinrichtung stattfindet, wodurch es zu Kondensation von verdampftem Wasser kommt. Wird dagegen die Vakuumentgasung nicht benutzt, ist festzustellen, dass die Schmelzestränge deutlich unregelmäßiger aus der Düse treten und deshalb ungleichmäßiger granuliert werden. Die weiteren Versuche finden aus diesen Gründen unter Verwendung der Vakuumentgasung und der Atmosphärischen Rückwärtsentgasung statt.

5.2 Quantifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter

5.2.1 Box-Behnken-Versuchsplan (PP-Cellulosefaser-Compounds)

In Tabelle 5-5 sind die Koeffizienten zur Erstellung eines Modells für die jeweiligen verfahrenstechnischen Zielgrößen beschrieben. Aus den Modellen geht die Abhängigkeit der Zielgrößen von den genauer untersuchten Faktoren hervor. Die Auflistung in der Tabelle ist eine komprimierte Form der Regressionsgleichung (siehe Gleichung 2-8), wobei die Schmelztemperatur, der SME, etc. die Zielgrößen sind, die Schneckendrehzahl, Faserfeuchtigkeit, etc. sind die Faktoren. Die Konstante b_0 ist ebenfalls angegeben. Die Zahlenwerte, die in der Tabelle 5-5 angegeben sind, entsprechen den Koeffizienten. Somit können mit Hilfe der Tabelle die Regressionsgleichungen erstellt werden und die genaue Abhängigkeit der Zielgrößen von den Faktoren diskutiert werden.

Die Schmelztemperatur ist von allen drei untersuchten Faktoren direkt abhängig. Die Cellulosefaser-Feuchtigkeit hat jedoch nur einen geringen Anteil am Gesamtwert der Schmelztemperatur. Der Spezifische Füllgrad und die Schneckendrehzahl bestimmen die Höhe der Schmelztemperatur maßgeblich, auch die Wechselwirkung der beiden Faktoren wirkt sich erhöhend auf die Schmelztemperatur aus. Die Wechselwirkung von Spezifischem Füllgrad und der Cellulosefaser-Feuchtigkeit hat einen herabsenkenden Einfluss auf die Schmelztemperatur. Der SME-Wert wird von dem Spezifischen Füllgrad und der Schneckendrehzahl beeinflusst, sowie von deren Wechselwirkung.

Tabelle 5-5: Koeffizienten zur Modellerstellung für die verfahrenstechnischen Zielgrößen (PP-CF-Compounds)

	Verfahrenstechnische Zielgrößen		
Faktoren	Schmelzetemperatur [°C]	Spez. Mech. Energieeintrag [kJ/kg]	Druck v. d. Düse [bar]
Konstante (b_0)	153,19	246,69	-1,943
Spezifischer Füllgrad ($FG_{\text{Spez.}}$) [kg*min/h]	401,7	477,3	43,5
Schneckendrehzahl (f_{rot}) [min^{-1}]	0,152	1,408	0,022
Faserfeuchtigkeit (CF_m) [wt.-%]	1,8	-	-
$FG_{\text{Spez.}} * f_{\text{rot}}$	0,73	-4,68	-
$FG_{\text{Spez.}} * CF_m$	-16,0	-	-
$f_{\text{rot}} * f_{\text{rot}}$	-	-	0,000017
Bestimmtheitsmaß	95,5%	97,2%	98,0%

Der Druck vor der Düse ist sehr stark abhängig von der Schneckendrehzahl, die sogar quadratisch in die Gleichung eingeht. Der Spezifische Füllgrad beeinflusst den Druck vor der Düse ebenfalls. Die Güte der Modelle zur Beschreibung der drei verfahrenstechnischen Zielgrößen liegt jeweils deutlich über 90%.

Folgende materialtechnische Zielgrößen werden nach Auswertung der Screening-Versuche mit PP-Cellulosefaser-Compounds eingehender untersucht:

- Schlagzähigkeit
- L*-Wert
- b*-Wert
- Viskosität

Bei der Schlagzähigkeit lassen die Ergebnisse aus den Screening-Versuchen darauf schließen, dass insbesondere die Feuchtigkeit der Cellulosefasern einen Einfluss auf die Ergebnisse hat. L*- und b*-Wert zeigen Abhängigkeiten von Spezifischem Füllgrad und der Drehzahl. Die Viskosität ist bei Betrachtung der Ergebnisse ebenfalls abhängig vom Spezifischen Füllgrad.

Die Modelle der Abhängigkeiten der materialtechnischen Zielgrößen von den untersuchten Faktoren Spezifischer Füllgrad, Schneckendrehzahl und Faserfeuchtigkeit werden in Tabelle 5-6 aufgezeigt.

Tabelle 5-6: Koeffizienten zur Modellerstellung für die materialtechnischen Zielgrößen (PP-CF-Compounds)

	Materialtechnische Zielgrößen			
Faktoren	Schlagzähigkeit [kJ/m ²]	L*-Wert [/]	b*-Wert [/]	Viskosität (1000 1/s) [Pa*s]
Konstante (b_0)	74,91	64,0	8,32	68,31
Spezifischer Füllgrad ($FG_{spez.}$) [kg*min/h]	-720,9	37,9	12,21	23,28
Schneckendrehzahl (f_{rot}) [min ⁻¹]	-	-	0,025	0,0024
Faserfeuchtigkeit (CF_m) [wt.-%]	0,423	0,43	0,74	0,155
$FG_{spez.} * FG_{spez.}$	2879,4	-	-	-
$CF_m * CF_m$	-	-0,0143	-	-
$FG_{spez.} * f_{rot}$	-	-	-0,117	-
$FG_{spez.} * CF_m$	-	-	-4,232	-
$f_{rot} * CF_m$	-	-	-0,00077	-
Bestimmtheitsmaß	32,2%	92,1%	91,3%	90,5%

Die Modellgüte bzw. das Bestimmtheitsmaß der Regressionsgerade für die Berechnung der Schlagzähigkeit beträgt lediglich 32,2%. Das bedeutet, dass mehr als 2/3 der Effekte, die die Bildung der Zielgröße beeinflussen, nicht durch das Modell erfasst werden. Das Modell ist also nicht geeignet um die Beeinflussung der Schlagzähigkeit zu verifizieren. Die Schlagzähigkeit ist demnach auch nicht abhängig von der Ausgangsfeuchte der Cellulosefasern. Die Anpassungen zur Berechnung der L*- und b*-Werte weisen ein hohes Bestimmtheitsmaß (92,1% bzw. 91,3%) auf. Der L*-Wert ist abhängig vom Spezifischen Füllgrad und der Faserfeuchtigkeit, die auch quadratisch in die Gleichung eingeht (siehe Gleichung 5-1).

$$L^* = 64,0 + 37,9FG_{spez.} + 0,43CF_m - 0,0143CF_m^2 \quad \text{Gleichung 5-1}$$

Die Bildung des b*-Wertes ist von sehr vielen Faktoren und Wechselwirkungen abhängig. Aus dem oben beschriebenen Modell geht aber hervor, dass die Drehzahl möglichst gering und der Spezifische Füllgrad möglichst hoch gewählt werden sollten. Einen hohen Einfluss bei der Bildung des b*-Wertes hat die Wech-

selwirkung von Spezifischem Füllgrad und der Schneckendrehzahl. Eine hohe Feuchtigkeit wirkt sich, wie auch beim L^* -Wert, positiv auf die Farbgebung aus. Es tritt dann weniger Verfärbung ein.

Die Beeinflussung der Viskosität durch die verfahrenstechnischen Faktoren kann ebenfalls durch eine Regressionsgleichung zufriedenstellend beschrieben werden. Der Anpassungsgrad beträgt 90,5%. Die Viskosität wird jedoch in einem relativ engen Bereich beeinflusst. Die Viskosität ist abhängig vom Spezifischen Füllgrad, der Schneckendrehzahl und der Faserfeuchtigkeit. Alle drei Faktoren bewirken eine Erhöhung der Viskosität.

Auf Grundlage der Regressionsgleichungen der beeinflussten verfahrens- und materialtechnischen Zielgrößen kann ein überlagertes Konturdiagramm erstellt werden. Hierbei können Grenzen festgelegt werden, die bei der Verarbeitung eingehalten werden sollen. Für das in Abbildung 5-7 dargestellte Konturdiagramm sind folgende Grenzen definiert: Der L^* -Wert des Compounds soll größer als 71, der b^* -Wert soll kleiner 14, die Schmelzeviskosität soll größer als 73 Pa*s sein, die Schmelzetemperatur soll unterhalb von 230°C liegen und der Spezifische Mechanische Energieeintrag soll kleiner als 700 kJ/kg sein.

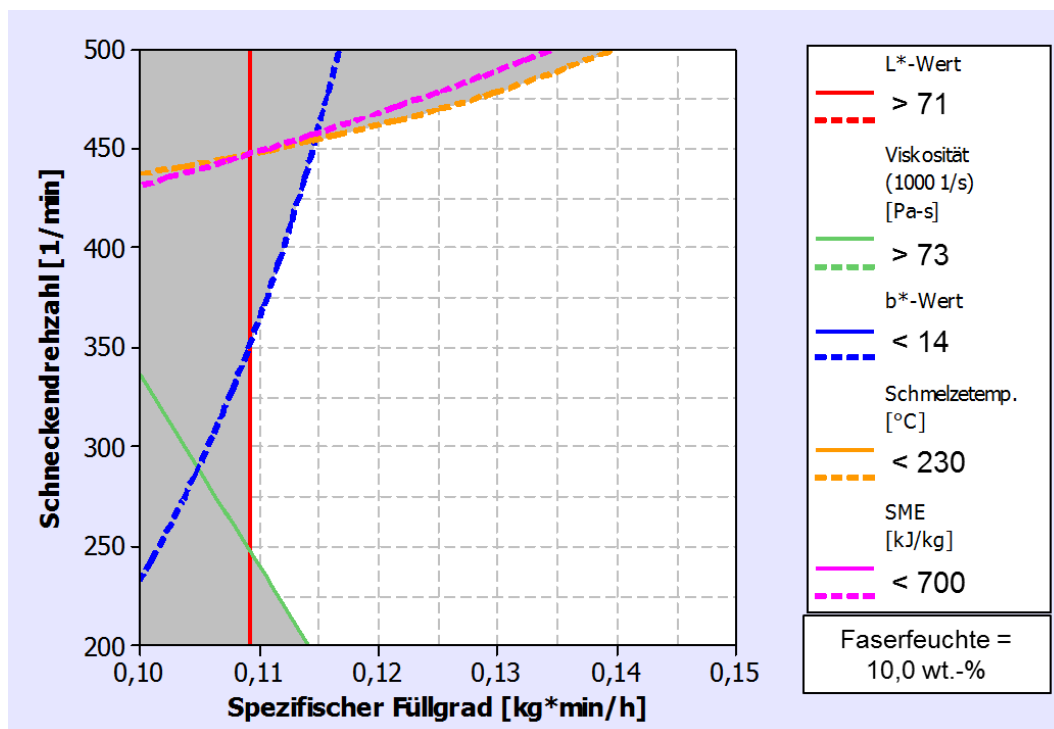


Abbildung 5-7: Gesamt-Konturdiagramm für den Einfluss von Schneckendrehzahl und Spezifischen Füllgrad auf die Zielgrößen (PP-CF-Compounds)

Bei Einhaltung dieser Werte kann eine schonende Compoundierung der Materialien gewährleistet werden. Die weiße Fläche im Diagramm beschreibt die Parameter, innerhalb derer die oben beschriebenen Grenzen eingehalten werden. Oberhalb eines Spezifischen Füllgrades von 0,11 kg*min/h und bei einer Drehzahl von 350 min⁻¹ ist die Bedingung erfüllt. Bei ansteigendem Füllgrad ($>0,14$

kg*min/h) kann die Drehzahl auch auf 500 min⁻¹ erhöht werden. Auf diese Weise ist eine Durchsatzoptimierung auf 75 kg/h möglich, ohne dass eine nennenswerte Schädigung des Compounds stattfindet. Die oben genannten Werte können natürlich auch angepasst werden, so dass das Prozessfenster weiter eingeschränkt oder vergrößert wird. Um beispielsweise einen b*-Wert <12 zu gewährleisten, muss der Spezifische Füllgrad größer als 0,14 kg*min/h gehalten werden, die Drehzahl kann dann innerhalb von 200-500 min⁻¹ variiert werden.

5.2.2 Wirkungsflächen-Versuchsplan (PLA-Cellulosefaser-Compounds)

In der Tabelle 5-7 sind die Konstanten und Koeffizienten für die Modellerstellung der verfahrenstechnischen Zielgrößen beschrieben.

Tabelle 5-7: Koeffizienten zur Modellerstellung für die verfahrenstechnischen Zielgrößen (PLA-CF-Compounds)

Faktoren	Verfahrenstechnische Zielgrößen		
	Schmelze- temperatur [°C]	Spez. Mech. Energieeintrag [kJ/kg]	Druck v. d. Düse [bar]
Konstante (b_0)	192,07	420,5	-0,41
Spezifischer Füllgrad ($FG_{spez.}$) [kg*min/h]	22,85	-526,54	73,83
Schneckendrehzahl (f_{rot}) [min ⁻¹]	0,128	0,626	0,014
$FG_{spez.} * f_{rot}$	-0,2239	-	-
Bestimmtheitsmaß	99,5%	94,2%	84,9%

Die Schmelztemperatur ist abhängig vom Spezifischen Füllgrad und der Schneckendrehzahl sowie der Wechselwirkung der beiden Faktoren. Der Anpassungsgrad des Modells beträgt 99,5%. Die relativ hohe Konstante (192,07) zeigt, dass die Schmelztemperatur einen gewissen Wert nicht unterschreiten kann. Der Einfluss des Spezifischen Füllgrads auf die Schmelztemperatur ist relativ gering, der Einfluss der Drehzahl dagegen wesentlich höher. Die Wechselwirkung von Schneckendrehzahl und Spezifischem Füllgrad bewirkt eine Verringerung der Schmelztemperatur.

Der SME wird maßgeblich von Spezifischem Füllgrad und der Schneckendrehzahl bestimmt, der Anpassungsgrad des Modells beträgt 94,2%. Eine Wechselwirkung der Faktoren ist nicht vorhanden. Eine Erhöhung des Spezifischen Füllgrades bewirkt eine Herabsenkung des SME, die Erhöhung der Schneckendrehzahl sorgt für eine ungleich höhere Anhebung des SME.

Der Anpassungsgrad der Regressionsgleichung für die Bestimmung des Drucks beträgt 84,9%. Der Druck vor der Düse wird maßgeblich beeinflusst von dem Spezifischen Füllgrad, die Schneckendrehzahl hat einen geringeren Einfluss.

Die genauen Einflüsse der betrachteten Faktoren und die Koeffizienten und Konstanten zur Quantifizierung der materialtechnischen Zielgrößen sind in Tabelle 5-8 beschrieben.

Tabelle 5-8: Koeffizienten zur Modellerstellung für die materialtechnischen Zielgrößen (PLA-CF-Compounds)

	Materialtechnische Zielgrößen		
Faktoren	L*-Wert [/]	b*-Wert [/]	Melt Flow Rate (190°C, 2,16kg) [g/10min]
Konstante (b_0)	65,9	18,1	6,8
Spezifischer Füllgrad ($FG_{\text{Spez.}}$) [kg*min/h]	85,77	-75,71	74,79
Schneckendrehzahl (f_{rot}) [min⁻¹]	-0,023	0,038	-0,002
$FG_{\text{Spez.}} * FG_{\text{Spez.}}$	-203,4	180,8	-170,9
$FG_{\text{Spez.}} * f_{\text{rot}}$	0,0692	-0,1166	-
Bestimmtheitsmaß	81,5%	92,9%	34,5%

Die Farbwerte (L*- und b*-Werte) werden von einer Erhöhung des Spezifischen Füllgrades positiv beeinflusst, d.h. der L*-Wert steigt mit steigendem Füllgrad und der b*-Wert wird gleichzeitig verringert. Die Erhöhung der Drehzahl wirkt sich negativ auf die Farbwerte aus, hierbei wird der L*-Wert verringert und der b*-Wert erhöht. Weiterhin gibt es Wechselwirkungen zwischen dem Spezifischen Füllgrad und der Drehzahl, die sich positiv auf die Farbwerte auswirken. Bei steigendem Füllgrad in Verbindung mit steigender Drehzahl wird das Compound demnach weniger thermisch beansprucht und es wird weniger verfärbt. Der Spezifische Füllgrad geht außerdem auch quadratisch in die Modellbildung ein, d.h. er hat einen sehr großen Einfluss auf die Farbgebung der Materialien. Die Modellgüte für die Farbwerte liegt bei 81,5 bzw. 92,9%, es wird durch das Modell also ausreichend erklärt, in welcher Form die Zielgrößen beeinflusst werden. Die Modellgüte für die Bestimmung des MFR-Wertes beträgt nur 34,5%. Aus diesem Grund kann nicht von einer Abhängigkeit des MFR-Wertes von den Faktoren Spezifischer Füllgrad und/oder Schneckendrehzahl ausgegangen werden.

Für die beeinflussten Zielgrößen kann ebenfalls ein Gesamtkonturdiagramm erstellt werden, siehe Abbildung 5-8. Innerhalb des Verarbeitungsfensters (weiße Fläche im Diagramm) sollen folgende Werte eingehalten werden: Der L*-Wert soll größer 70 sein, der b*-Wert kleiner als 18. Die Schmelzetemperatur soll kleiner als 235°C liegen und der SME unterhalb von 700 kJ/kg.

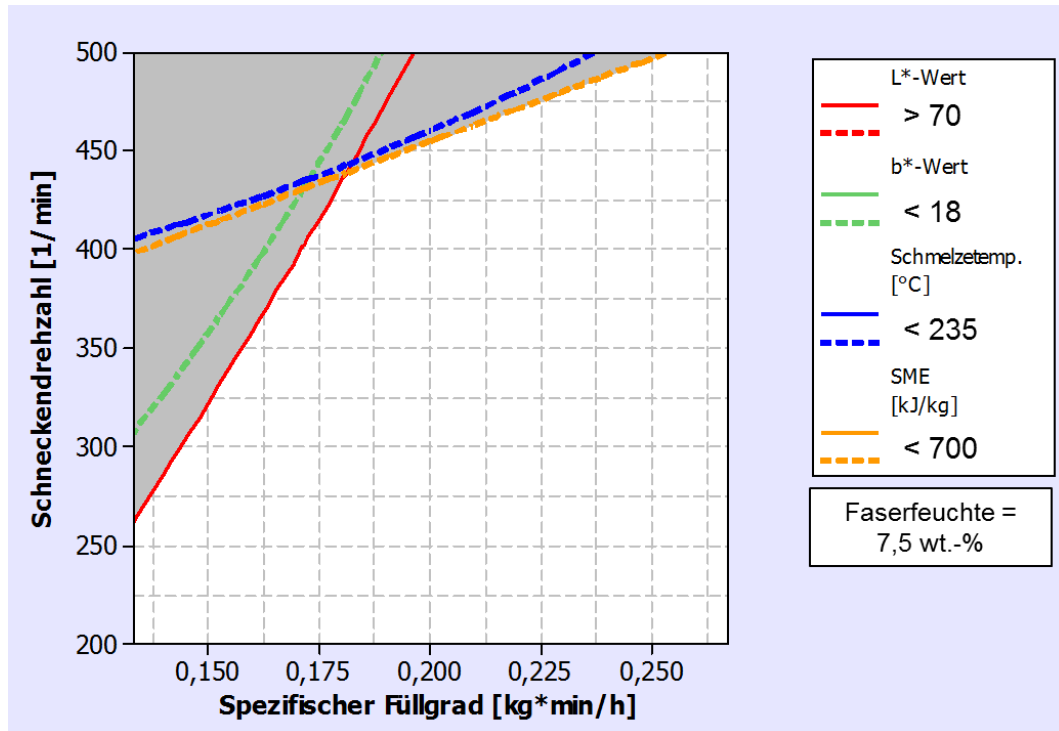


Abbildung 5-8: Gesamt-Konturdiagramm für den Einfluss von Schneckendrehzahl und Spezifischen Füllgrad auf die Zielgrößen (PLA-CF-Compounds)

Die Grenzen für die Farbwerte und die Schmelzetemperatur wurden im Vergleich zu den PP-Cellulosefaser-Compounds geringfügig angepasst. Dies ist notwendig und nachvollziehbar, da die PLA-Cellulosefaser-Compounds einen höheren Anteil Fasern enthalten.

Das Diagramm zeigt, dass bei einem geringen Spezifischen Füllgrad von 0,133 kg*min/h maximal eine Drehzahl von ca. 260 min⁻¹ für die Compoundierung gewählt werden sollte. Bei einem Füllgrad von 0,2 kg*min/h kann bereits mit einer Drehzahl von maximal 450 min⁻¹ extrudiert werden und bei dem maximal untersuchten Spezifischen Füllgrad von 0,267 kg*min/h kann mit der maximal untersuchten Drehzahl von 500 min⁻¹ compoundingiert werden, ohne dass Materialschädigungen oder zu hohe Temperaturen erreicht würden. Dadurch kann ein maximaler Durchsatz bei der Compoundierung von 133,5 kg/h erreicht werden.

5.2.3 Variation von PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit

Die folgenden Tabellen und Diagramme beschreiben die Einflüsse der Feuchtigkeit des PLAs und der Cellulosefasern bei der extrusionstechnischen Verarbeitung.

Die Tabelle 5-9 zeigt die Einflüsse der Feuchtigkeit auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen.

Tabelle 5-9: Effekte von PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit auf verfahrenstechnische Zielgrößen (Datenmittelwerte), in Klammern ist die jeweilige prozentuale Abweichung vom Mittelwert angegeben

Faktoren	Faktorstufen	Schmelze- temperatur [°C]	Spez. Mech. Energieeintrag (SME [kJ/kg])	Druck vor der Düse [bar]
PLA	trocken (0,015 wt.-%)	224,5 (0)	520 (-7)	19,5 (+1)
	feucht (0,090 wt.-%)	225 (0)	598 (+7)	19,0 (-1)
Cellulose- faser	trocken (0,1 wt.-%)	228,5 (+2)	534 (-4)	18,5 (-4)
	feucht (10,0 wt.-%)	221 (-2)	582 (+4)	20 (+4)
Mittelwert aller Messungen		224,8	558	19,3

Die Schmelztemperatur wird durch die Variation der PLA-Feuchtigkeit nicht beeinflusst, von der Variation der Cellulosefaser-Feuchtigkeit jedoch schon. Bei Einarbeitung der feuchten Cellulosefasern (10 wt.-% Wasser) wird die Schmelztemperatur um 2% im Vergleich zum Mittelwert herabgesenkt. Im Vergleich zur Verarbeitung der trockenen Cellulosefasern bedeutet das eine Reduktion der Schmelztemperatur um 7,5 °C. Der SME-Wert wird bei der Verarbeitung der feuchten Materialien um 7 (PLA) bzw. 4% (Cellulosefasern) im Vergleich zum Mittelwert erhöht. Der Druck vor der Düse wird von der Variation der PLA-Feuchtigkeit nicht beeinflusst. Die Variation der Cellulosefaser-Feuchtigkeit bewirkt dagegen eine Änderung des Drucks. Bei höherer Feuchtigkeit steigt der Druck vor der Düse um 4% im Vergleich zum mittleren Druck.

In Abbildung 5-9 ist die Beeinflussung der materialtechnischen Zielgrößen durch die Variation der Materialfeuchten dargestellt. Die vertikale Achse zeigt den Anpassungsgrad der erstellten Modelle für die Zielgrößen an. Dies zeigt an, inwiefern die Zielgrößen von der PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit beeinflusst werden. Als Maß für eine Beeinflussung ist ein Bestimmtheitsmaß von $\geq 80\%$ festgelegt worden (gestrichelte Linie).

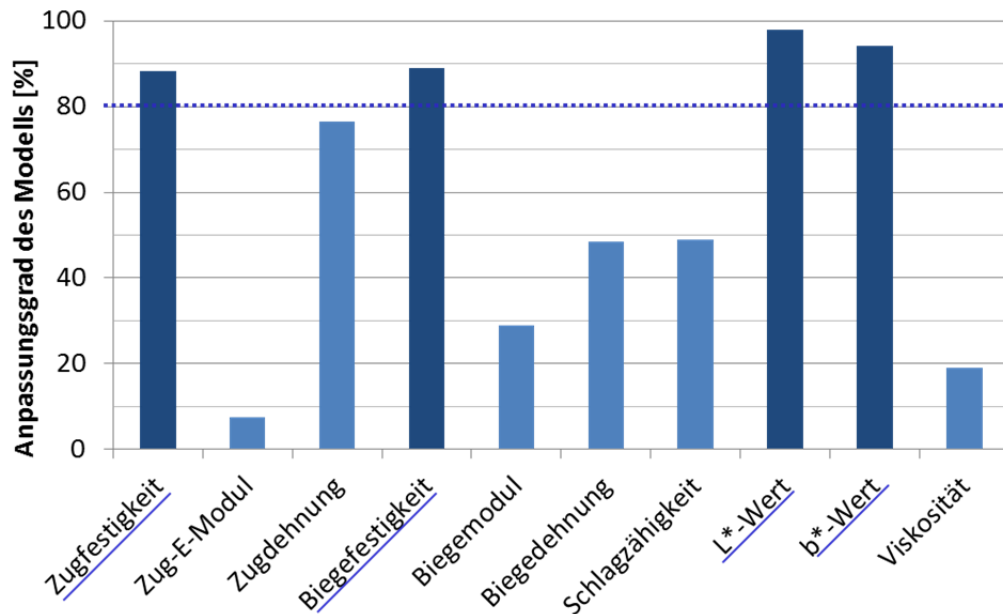


Abbildung 5-9: Anpassungsgrad der Modelle für die materialtechnischen Zielgrößen bei der Variation von PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit

Aus der Abbildung geht hervor, dass die Zugfestigkeit, die Biegefestigkeit und der L*- und b*-Wert von der Variation der PLA- und/oder der Cellulosefaser-Feuchtigkeit beeinflusst werden. Die Höhe des Einflusses und ob PLA- oder Faserfeuchtigkeit oder beide in Kombination hierfür verantwortlich sind, wird durch dieses Diagramm nicht geklärt.

Die genaueren Einflüsse von PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit auf die Zielgrößen Zug- und Biegefestigkeit und L*- und b*-Wert sind in Abbildung 5-10 dargestellt.

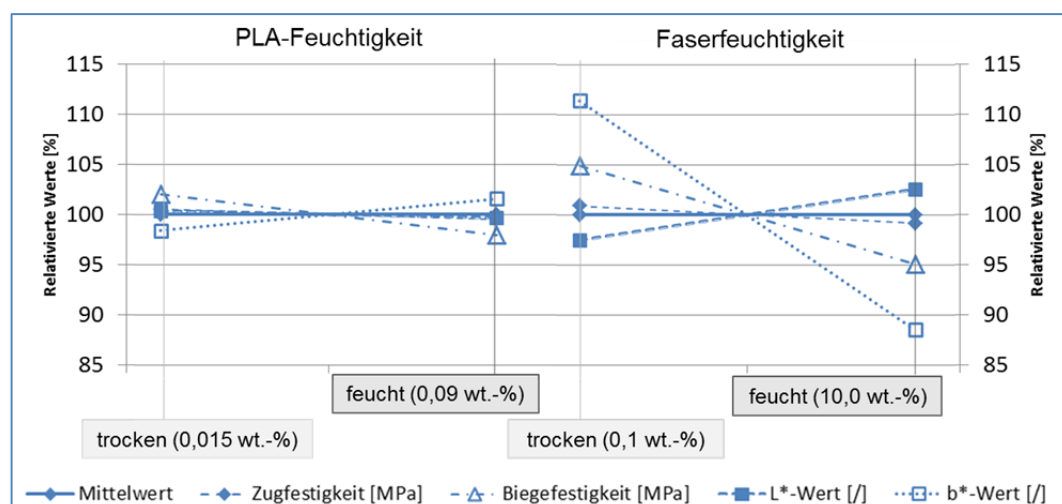


Abbildung 5-10: Einflüsse der PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit auf die Zug- und Biegefestigkeit, L*- und b*-Wert

Die Zugfestigkeit wird signifikant durch die Variation der Feuchtigkeit von PLA und Cellulosefasern beeinflusst, d.h. es kann eine systematische Abweichung der Messwerte festgestellt werden, die größer ist, als die Standardabweichung. Die

Standardabweichung bei der Bestimmung der Zugfestigkeit ist in diesem Fall allerdings sehr gering und in diesem konkreten Fall ist auch die Variation der Zugfestigkeitswerte sehr gering. Der Einfluss der PLA-Feuchtigkeit auf die Zugfestigkeit ist zu vernachlässigen. Durch die Verwendung feuchter Cellulosefasern wird die Zugfestigkeit um 1% im Vergleich zum Mittelwert herabgesenkt. Die Biegefestigkeit wird dagegen deutlicher durch die Materialfeuchtigkeiten beeinträchtigt. Bei der Verwendung von feuchtem PLA wird die Biegefestigkeit um ca. 2%, bei der Verwendung feuchter Cellulosefasern um ca. 5% herabgesenkt. Der L*-Wert (Helligkeit) der Compounds wird durch die Variation der PLA-Feuchte nicht beeinflusst. Bei Verwendung der feuchten Cellulosefasern wird die Helligkeit jedoch um ca. 5% im Vergleich zur Verwendung der trockenen Cellulosefasern erhöht. Der b*-Wert (Gelbfärbung) wird durch die Verwendung des trockenen PLAs geringfügig erhöht (ca. 2%). Bei der Einarbeitung der feuchten Cellulosefasern wird der b*-Wert im Vergleich zum Mittelwert um ca. 12% verringert. Das bedeutet eine deutlich geringere Gelbfärbung der Compounds bei der Verwendung von nicht vorgetrockneten, feuchten Cellulosefasern.

Der Einfluss der Materialfeuchtigkeiten auf die Molmassenverteilung des PLA ist in Abbildung 5-11 dargestellt.

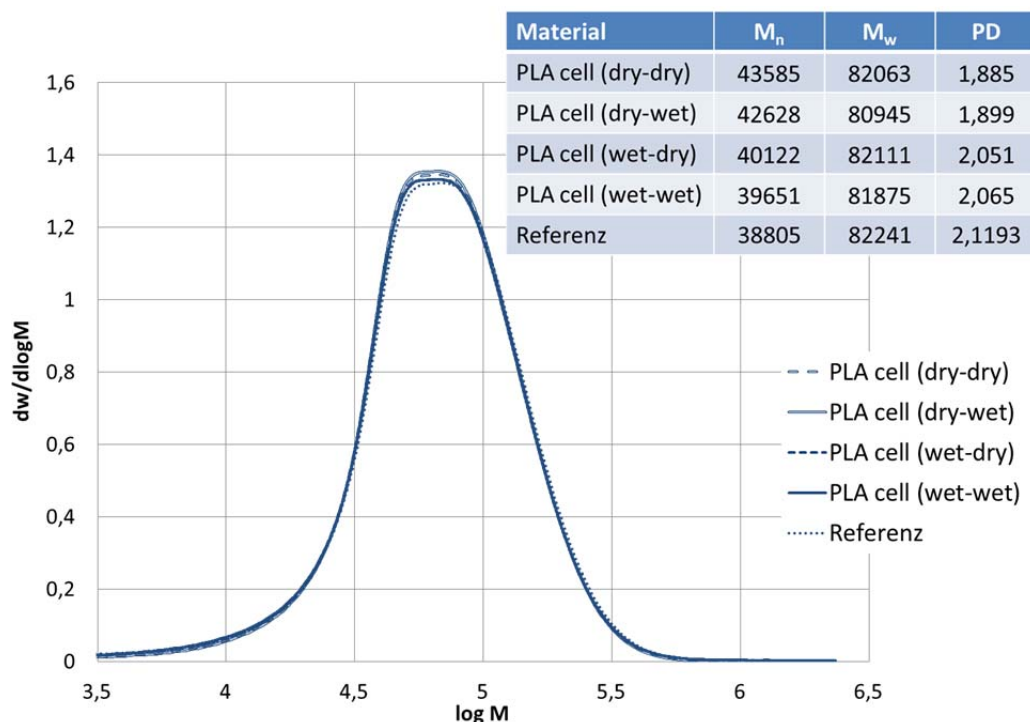


Abbildung 5-11: Gegenüberstellung der Molmassenverteilungen der PLA-Cellulosefaser-Compounds für die Variation der Materialfeuchtigkeiten (Bezeichnung in Klammern meint zuerst die PLA- und dann die Cellulosefaser-Feuchtigkeit)

Die Molmassenverteilungen zeigen keine gravierenden Unterschiede untereinander. Das Referenzmaterial hat sogar eine höhere Polydispersität (PD) als die verarbeiteten Materialien. Das PLA, welches nicht vorgetrocknet wurde und mit feuchten Cellulosefasern verarbeitet wurde (PLA cell wet-wet) hat ein beinah

ebenso hohes Molekulargewicht (M_w) wie das PLA, welches getrocknet und in Verbindung mit trockenen Cellulosefasern (PLA cell dry-dry) verarbeitet wurde.

Die Materialien unterscheiden sich nur geringfügig voneinander. Der Unterschied ist geringer als 10%, so dass nicht von einem molekularen Abbau des PLA durch hydrolytische Degradation während des Prozesses ausgegangen werden kann.

5.2.4 Diskussion der Ergebnisse zur Quantifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter

5.2.4.1 Box-Behnken-Versuchsplan (PP-CF-Compounds)

Die Ergebnisse aus Versuchsreihe 1 zu den verfahrenstechnischen Parametern werden durch die Messergebnisse aus dem Box-Behnken-Versuchsplan bestätigt und weiter verfeinert. Die erhaltenen Modelle zeigen die genaue Abhängigkeiten der verfahrenstechnischen Zielgrößen von den Faktoren Schneckendrehzahl, Spezifischer Füllgrad und Cellulosefaser-Feuchtigkeit auf. Dabei hat die Feuchtigkeit der Cellulosefasern lediglich Einfluss auf die Schmelztemperatur, die durch eine erhöhte Feuchtigkeit herabgesenkt wird. Diese Absenkung der Schmelztemperatur kann mit der kühlenden Wirkung bei Verdunstung bzw. Verdampfung des Wassers erklärt werden. In Kapitel 5.1.3 ist bereits der Einfluss der Verdampfungsenthalpie beschrieben worden. Diese kann dem Prozess offensichtlich eine signifikante Menge an Energie entziehen und so für eine geringere Schmelztemperatur sorgen.

Die Verdampfung des Wassers hat aber offensichtlich keinen Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften der Compounds. Die Schlagzähigkeit hängt nicht, wie anhand der Ergebnisse aus den Screening-Versuchen erwartet, von der Feuchtigkeit der Cellulosefasern ab. Lediglich der L^* - und der b^* -Wert und die Schmelzviskosität werden durch die Variation der Faktoren beeinflusst. Die Verfärbung der Compounds wird mit zunehmendem Spezifischen Füllgrad, abnehmender Drehzahl und zunehmender Feuchtigkeit der Cellulosefasern geringer. Je weniger Scherung auf das Material einwirkt und je mehr Feuchtigkeit in den Cellulosefasern vorliegt, desto geringer ist die Verfärbung und somit die Degradation der Cellulosefasern. Diese Erkenntnis steht im genauen Gegensatz zu der Beobachtung, die SAPIEHA et al. [123] (siehe Kapitel 2.2.1.5, S. 19) gemacht haben. Die Viskosität der Compounds wird nur in geringem Maße beeinflusst, jedoch steigt sie signifikant bei Erhöhung der Drehzahl, des Füllgrades und der Feuchtigkeit der Fasern an.

5.2.4.2 Wirkungsflächen-Versuchsplan (PLA-CF-Compounds)

Bezogen auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen können aus den Ergebnissen des Wirkungsflächen-Versuchsplans die gleichen Schlüsse gezogen werden, wie aus den Screening-Versuchen. Die Ergebnisse der Screening-Versuche wurden

bestätigt und weiter detailliert, so dass eine Modellbildung für die untersuchten verfahrenstechnischen Zielgrößen möglich ist. Der Einfluss der Faserfeuchtigkeit wird gesondert in Kapitel 5.2.4.3 diskutiert.

Die Faktoren Schneckendrehzahl und Spezifischer Füllgrad haben lediglich Einfluss auf den L^* - und b^* -Wert. Die Viskosität (MFR-Wert) wird von der Variation der Faktoren nicht beeinflusst. Die Modellgüte beträgt nur 34,5%. Das bedeutet auch, dass sehr wahrscheinlich kein Abbau des PLA durch die Scherung während der Verarbeitung stattfindet, da sonst eine erhebliche Erhöhung des MFR-Wertes zu verzeichnen wäre (vgl. [133], S. 74). Dies hätte eine Abnahme der Viskosität zur Folge.

5.2.4.3 Variation von PLA- und Cellulosefaser-Feuchtigkeit

Die Ergebnisse zeigen einen absenkenden Einfluss der Cellulosefaser-Feuchtigkeit auf die Schmelzetemperatur. Diese Erkenntnisse ergaben sich ebenfalls in den vorherigen Versuchen und wurden bereits beschrieben (siehe Kapitel 5.2.4.1). Weiterhin wird der Spezifische Mechanische Energieeintrag (SME) durch die Variation der Cellulosefaser-Feuchtigkeit beeinflusst. Bei zunehmender Feuchtigkeit der Cellulosefasern und des PLA steigt der SME an. Als Begründung hierfür kann erneut die kühlende Wirkung des enthaltenen Wassers durch die Verdampfungsenthalpie genannt werden. Durch die Entziehung der Energie aus dem System kühlt die Compound-Schmelze ab. In der Folge steigt die Viskosität der Schmelze an [141]. Aus diesem Grund ist ggf. ein erhöhter mechanischer Energiebedarf für die Vermischung und die Förderung der Schmelze notwendig [51]. Dies ist ebenfalls die Erklärung für den erhöhten Druck vor der Düse bei der Erhöhung der Cellulosefaser-Feuchtigkeit. Die Auswirkung der Druckerhöhung bei der Einarbeitung feuchter CF wurde ebenfalls bei der Identifizierung der einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter für die PP-CF-Compounds (Kapitel 5.1.3.1) erkannt, bei den PLA-CF-Compounds zeigte sich ein gegensätzlicher Effekt. Eine Beeinflussung des SME (Anstieg um ca. 4% bei Verwendung von feuchten CF) wurde nur bei den PLA-CF-Compounds registriert.

Die Auswirkung der Cellulosefaser-Feuchtigkeit auf die L^* - und b^* -Werte ist bereits in Kapitel 5.2.4.1 diskutiert worden. Die Zugfestigkeit der hergestellten Compounds wird nur in sehr geringem Ausmaß durch die Variation der Feuchtigkeiten beeinflusst und kann deshalb vernachlässigt werden. Die Biegefestigkeit wird dagegen in höherem Umfang beeinträchtigt. Sie wird durch die Zunahme der Cellulosefaser-Feuchtigkeit auf 10 wt.-% um 5% im Vergleich zum Mittelwert verringert. Der Grund hierfür könnte sein, dass die Fasern durch das verdampfende Wasser schlechter an die PLA-Matrix angebunden werden, oder dass sich vermehrt Fehlstellen bzw. Poren im Material bilden.

Wichtig im Hinblick auf eine eventuelle Hydrolyse des Materials ist, dass die Viskosität nicht von der Feuchtigkeit der Fasern oder des PLA beeinflusst wird. Dies ist ein erstes bedeutendes Indiz dafür, dass keine Ketteneinkürzung des PLA während der Compoundierung stattfindet (vgl. [133], S. 74). Die weiterführenden GPC-Messungen zeigen, dass kein wesentlicher Molmassenabbau stattgefunden hat. Im Vergleich zu den angenommenen theoretischen Molmassen (siehe Kapitel 4.3.2) ist dieses Ergebnis sehr bemerkenswert. Es zeigt weiterhin, dass eine Trocknung der Cellulosefasern, bei einer ausreichenden Entgasung und damit gewährleisteter Abführung des dampfförmigen Wassers aus dem Prozess, nicht notwendig ist.

5.3 Charakterisierung der Einflüsse der Fasermorphologie

5.3.1 PP-Cellulosefaser-Compounds

In der Abbildung 5-12 sind die Ergebnisse der Variation der Cellulosefaser-Morphologie und der -Herkunft als Übersicht dargestellt. Die Abbildung beschreibt die Veränderung der untersuchten Zielgrößen der jeweiligen Compounds im Vergleich zum reinen Matrixwerkstoff. Mit grün und rot wird zusätzlich gekennzeichnet, ob es sich bei der Veränderung um eine positive oder negative Veränderung handelt.

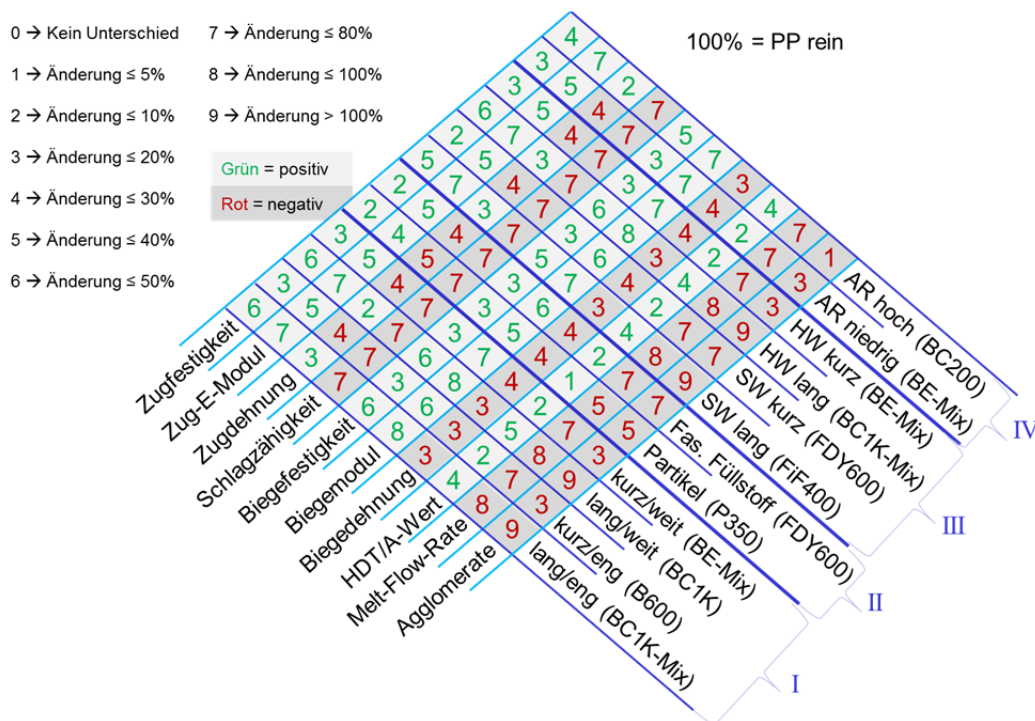


Abbildung 5-12: Übersicht der Ergebnisse der Variation der Cellulosefaser-Morphologie und -Herkunft auf die materialtechnischen Zielgrößen im Vergleich zu reinem PP

Für die Zugfestigkeit, Zug-E-Modul, Zugdehnung, Schlagzähigkeit, Biegefestigkeit, Biegemodul, Biegedehnung, HDT/A-Wert und den MFR-Wert wird eine Erhö-

hung der Messwerte als positiv gewertet, bei der Agglomeratbestimmung wird dagegen eine Erhöhung des Messwertes als negativ bewertet.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Verwendung von langen Cellulosefasern im Vergleich zu kurzen Fasern (Vergleich I) höhere Kennwerte bei den Festigkeiten und Steifigkeiten bewirkt. Die Zugdehnung kann ebenfalls erheblich verbessert werden, die kurzen Fasern bewirken im Vergleich zum reinen PP sogar eine Verminderung der Zugdehnung, während die langen Cellulosefasern für erhöhte Zugdehnungen sorgen. Die MFR-Werte werden bei den langen Cellulosefasern in größerem Umfang verringert, als bei den kürzeren Fasertypen, generell ist jedoch bei der Zugabe von Füllstoffen oder Fasern immer eine Verringerung der Fließfähigkeit zu erwarten. Die Zunahme der Agglomeratneigung ist bei den langen Cellulosefasern sehr deutlich erkennbar. Der Anstieg bei den kurzen Cellulosefasern ist <20%, während dieser bei den langen Cellulosefasern bei >100% liegt. Die Verteilung des Aspect Ratio (eng/weit) scheint keinen Einfluss auf die mechanischen und rheologischen Eigenschaften zu haben.

Der Vergleich von faserigen Füllstofffasern und Partikeln (II) zeigt, dass der faserige Füllstoff (FDY600) höhere Kennwerte bei Zug-E-Modul, Biegemodul und der Wärmeformbeständigkeit (HDT/A-Wert) bewirkt. Die komprimierten Fasern (P350) weisen allerdings Vorteile beim MFR-Wert und bei der Agglomerationsneigung auf.

Die Gegenüberstellung von kurzen und langen sowie Soft- und Hardwoodfasern (Vergleich III) zeigt hinsichtlich der Einflüsse der Faserlänge die gleichen Auswirkungen wie der Vergleich I. Bei den Hardwood-Fasertypen (BE-Mix und BC1K-Mix) sind im Vergleich zu den Softwood-Fasern leicht erhöhte Werte für die Zugfestigkeit und den Biegemodul festzustellen. Die anderen Werte unterscheiden sich hinsichtlich der Faserherkunft nicht.

Der Unterschied zwischen niedrigem und hohem Aspect Ratio der Fasern (Vergleich IV) wirkt sich insofern aus, dass die Festigkeit und die Steifigkeit des Compounds bei Verwendung einer Fasertypen mit höherem Aspect Ratio erhöht werden. Weiterhin werden bei Verwendung der BC200-Fasertypen (hohes Aspect Ratio) der HDT/A-Wert erhöht und die Agglomeration der Fasern verringert. Die Fließfähigkeit (MFR-Wert) bleibt durch die Variation unbeeinflusst.

Die Abbildung 5-13 zeigt die jeweils optimal erreichten Kennwerte, die durch den Einsatz der verschiedenen Cellulosefasertypen erzielt werden können. Der CFT, bei dem dieser Kennwert erhalten wird, ist jeweils in Klammern an der entsprechenden Zielgröße genannt. Der maximal erreichte Kennwert bzw. optimale Kennwert für die Cellulosefaser-Compounds ist als 100% festgesetzt. Zum Vergleich sind die in Relation gesetzten Kennwerte des unverstärkten Polypropylen eingetragen. Zusätzlich sind die relativierten Werte für das BC200-Compound

eingetragen, welches sich als beste Kompromisslösung erwiesen hat.

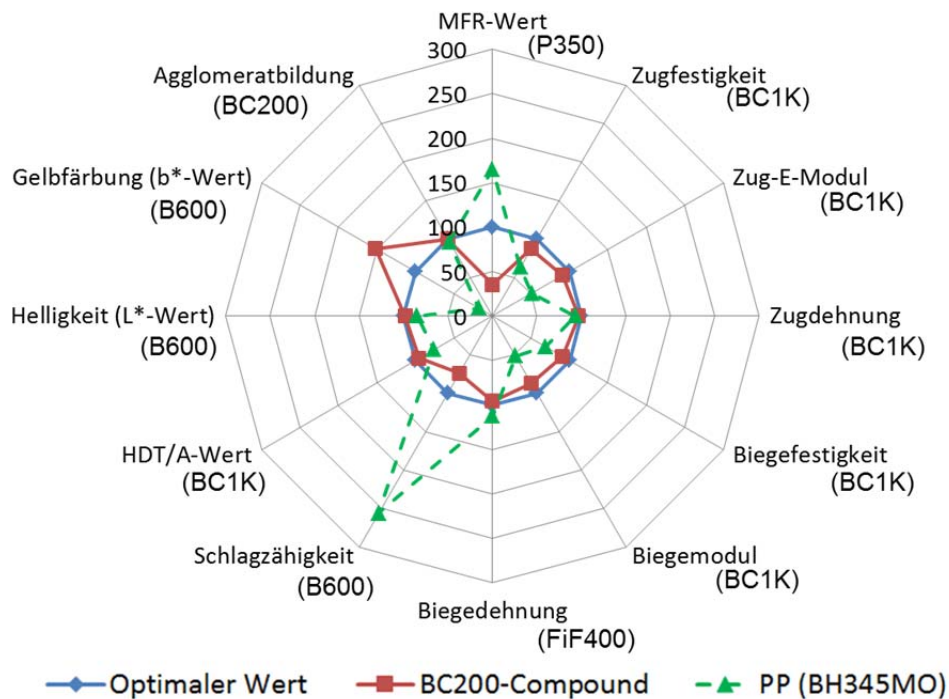


Abbildung 5-13: Optimale erreichte Werte der untersuchten Zielgrößen im Vergleich zum BC200-Compound als Kompromisslösung und dem ungefüllten PP, in Klammern sind die Fasertypen mit den jeweils besten Kennwerten angegeben

Die Schlagzähigkeit und der MFR-Wert aller Cellulosefaser-Compounds liegen deutlich unter dem Niveau des unverstärkten PP. Bei der Farbgebung der Compounds (L*-und b*-Werte) zeigt sich, dass sogar der hierfür am besten geeignete Cellulosefasertyp (B600) eine deutliche Verfärbung im Vergleich zum reinen PP bewirkt.

Die BC200-Fasern haben insgesamt die ausgewogensten Eigenschaften der untersuchten Cellulosefasertypen. Bei dieser Fasertype werden gerade bei den mechanischen Eigenschaften (Dehnung, Festigkeit, E-Modul) Werte erreicht, die fast immer an die Maximalwerte heranreichen. Die Agglomeratbildung der BC200-Fasertype im Compound ist sehr gering im Vergleich zu den anderen untersuchten CFT. Dies ist interessant, da die BC200-Fasern über einen relativ hohen Aspect Ratio verfügen, was tendenziell eher zu einer erhöhten Agglomeratbildung führt. Auf der anderen Seite können durch den hohen Aspect Ratio der BC200-Fasern die relativ hohen mechanischen Kennwerte erklärt werden. Der hohe Aspect Ratio des BC200 ist wiederum die Ursache für den geringen MFR-Wert, der um 50% niedriger liegt, als der des P350-Fasertyps. Bei den P350-Fasern handelt es sich um die komprimierten Fasern (Partikel), die ein sehr geringes Aspect Ratio aufweisen und entsprechend geringe Festigkeitswerte erzielen. Im Umkehrschluss sorgt der niedrige Aspect Ratio aber für die höchste Fließfähigkeit aller untersuchten Cellulosefaser-Compounds.

Das größte Problem der kurzfaserverstärkten thermoplastischen Kunststoffe ist, wie auch hier gut veranschaulicht ist, die geringe Schlagzähigkeit.

5.3.2 PLA-Cellulosefaser-Compounds

In Abbildung 5-14 sind die Ergebnisse der Variation der Cellulosefaser-Morphologie und der –Herkunft in Relation zum unverstärkten PLA dargestellt. Es gelten die bereits ausgeführten Bedingungen analog zur Abbildung 5-12 (S. 94).

Bereits bei oberflächlicher Betrachtung der Ergebnisse fällt auf, dass im Vergleich zu den PP-Cellulosefaser-Compounds deutlich weniger positive Erhöhungen der Kennwerte erreicht werden. Lediglich die Zug-E-Moduln, die Biegemoduln und die Wärmeformbeständigkeit der PLA-Compounds können im Vergleich zum reinen PLA verbessert werden. Die Fasertypen BC200 bildet hier eine Ausnahme bedingt dadurch, dass die Zugfestigkeit im BC200-Compound um <5% im Vergleich zum PLA erhöht werden kann. Auf die weiteren Parameter hat die Zugabe der Cellulosefasern einen negativen Einfluss.

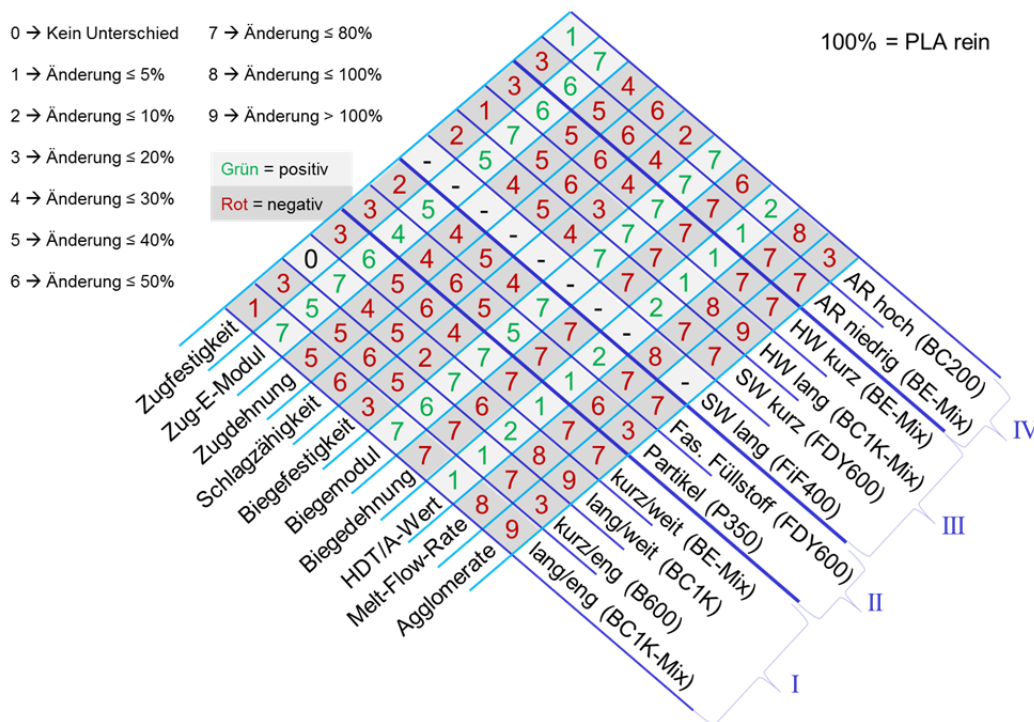


Abbildung 5-14: Übersicht der Ergebnisse der Variation der Cellulosefaser-Morphologie und -Herkunft auf die materialtechnischen Zielgrößen im Vergleich zu reinem PLA

Der Vergleich der unterschiedlichen Fasermorphologien ist aber dennoch interessant. Die langen Cellulosefasern (Vergleich I) weisen höhere Zug-, Biegefestigkeiten und Zug-E-Moduln auf, als die kurzen Cellulosefasern. Die Verteilung des Aspect Ratio der Cellulosefasern hat keinen Einfluss auf die untersuchten Kennwerte. Die kurzen Cellulosefasern zeigen weniger negativen Einfluss auf den MFR-Wert und die Agglomeratbildung.

Der Vergleich zwischen faserigem Füllstoff und Cellulosepartikeln (II) zeigt, dass der faserige Füllstoff höhere mechanische Kennwerte im Compound erzielt. Gleichzeitig bewirken die partikelartigen Cellulosefasern (P350) weniger Agglomerierung und eine geringere Absenkung des MFR-Wertes.

Vergleich III ist für die PLA-Cellulose-Compounds nur unvollständig möglich, da das FiF400-Compound aufgrund einer sehr hohen Sprödigkeit nicht bzw. nur in geringen Mengen granuliert werden konnte. In Bezug auf den Einfluss der mittleren Faserlänge sind aber die gleichen Tendenzen festzustellen wie bei Vergleich I. Der Vergleich der Faserherkunft zwischen FDY600 (Softwood) und BE-Mix (Hardwood) zeigt, dass die Werte der Wärmeformbeständigkeit, der Schlagzähigkeit, der Zugdehnung und der Zugfestigkeit des FDY600-Compounds geringfügig höher sind, als die des BE-Mix-Compounds. Das BE-Mix-Compound weist dagegen einen höheren Zug-E-Modul auf. Die weiteren Kennwerte unterscheiden sich nicht voneinander.

Der Einfluss des Aspect Ratio der CFT (Vergleich IV) ist analog zu den Ergebnissen für die PP-Compounds. Der höhere Aspect Ratio bewirkt eine Erhöhung der mechanischen Eigenschaften (Ausnahme Zug- und Biegemodul). Der MFR-Wert wird durch den höheren Aspect Ratio negativ beeinflusst, die Agglomerationsneigung ist deutlich geringer.

Die Abbildung 5-15 zeigt die jeweils optimal erreichten Kennwerte, die durch den Einsatz der verschiedenen Cellulosefasertypen erzielt werden können.

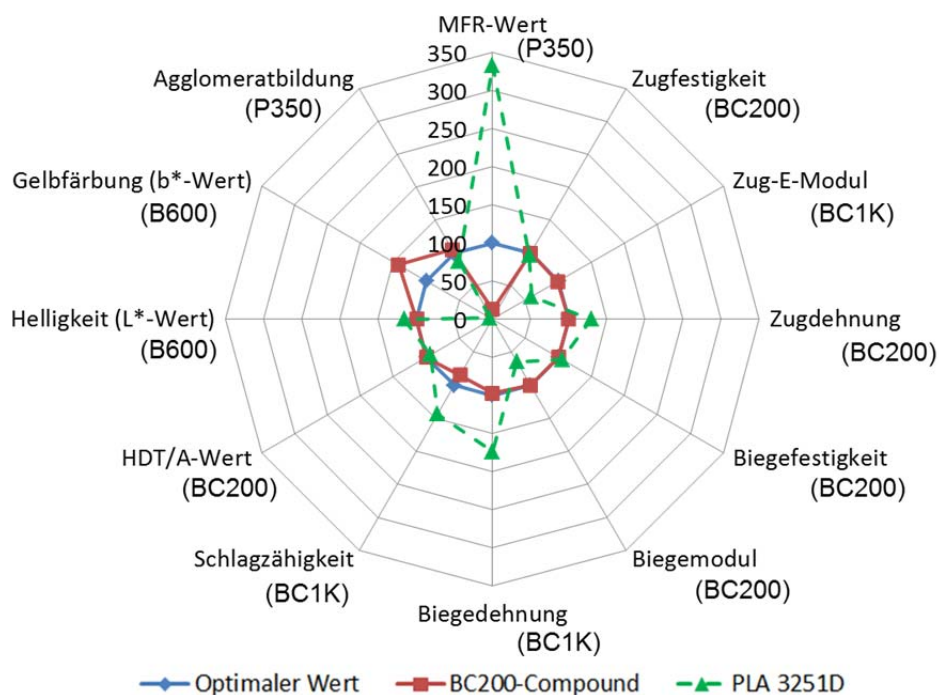


Abbildung 5-15: Optimale erreichte Werte der untersuchten Zielgrößen im Vergleich zum BC200-Compound als Kompromisslösung und dem ungefüllten PLA, in Klammern sind die Fasertypen mit den jeweils besten Kennwerten angegeben

Der CFT, bei dem dieser Kennwert erhalten wird, ist jeweils in Klammern an der entsprechenden Zielgröße genannt. Der maximal erreichte Kennwert für die Cellulosefaser-Compounds ist als 100% festgesetzt. Zum Vergleich sind die in Relation gesetzten Kennwerte des unverstärkten PLA eingetragen. Zusätzlich sind die relativierten Werte für das BC200-Compound eingetragen, welches sich als beste Kompromisslösung erwiesen hat.

Deutlich aus der Abbildung zu ersehen ist, dass die Materialkennwerte des PLA nur bei der Steifigkeit (Biegemodul und Zug-E-Modul) sowie der Wärmeformbeständigkeit verbessert werden können. Die höchsten Werte hinsichtlich der mechanischen Kennwerte erreichen die Fasertypen mit einem hohen Aspect Ratio, wie z.B. BC200 und BC1K. Die BC200-CFT hat sich, wie auch bei den PP-CF-Compounds, als beste Kompromisslösung erwiesen, auch wenn der MFR-Wert durch die Verwendung dieser Cellulosefasertypen extrem herabgesenkt wird. Die starke Verringerung der Fließfähigkeit ist auch auf den deutlich höheren Fasergehalt der PLA-Compounds (21,5 vol.-%) im Vergleich zu den PP-Compounds (13,0 vol.-%) zurückzuführen.

5.3.3 Diskussion der Ergebnisse zu den Einflüssen der Fasermorphologie

Die Ergebnisse zeigen generell, dass für die Erhöhung der mechanischen Kennwerte die Verwendung von langen Cellulosefasern mit einem hohen L/d-Verhältnis sinnvoll ist. Übersteigen die Fasern jedoch eine bestimmte Länge bzw. steigt das L/d-Verhältnis zu sehr an (BC1K-, BC1K-Mix- und FiF400-Fasern), erhöht sich zudem die Agglomerationsneigung der Fasern. Die genannten Fasertypen besitzen jeweils eine mittlere Faserlänge oberhalb von 100 µm und ein L/d-Verhältnis von > 5. Die BC200-Fasern haben zwar ebenfalls ein L/d-Verhältnis von > 5, die mittlere Faserlänge liegt allerdings unterhalb von 70 µm. Die Agglomerationsneigung der BC200-Fasern ist ebenfalls deutlich geringer, als die der drei zuvor genannten Fasertypen.

Die Herkunft der Cellulosefasern (Soft- oder Hardwood) hat keinen erkennbaren Einfluss auf die Compouneigenschaften. Die FiF400-Fasern (Softwood) haben zwar ein deutlich höheres L/d-Verhältnis im Vergleich zu den BC1K-Mix-Fasern (Hardwood). Dieses höhere L/d-Verhältnis führt jedoch offensichtlich nicht zu einer signifikanten Festigkeitsverbesserung. Der Grund hierfür könnte in der erhöhten Agglomerationsneigung der FiF400-Fasern liegen. Aber auch bei dem Vergleich der kürzeren Cellulosefasern hinsichtlich der Herkunft (FDY600, Softwood vs. BE-Mix, Hardwood) wurden keine signifikanten Unterschiede bei der Festigkeit, Steifigkeit oder der Wärmeformbeständigkeit ermittelt. Die Literatur gibt hingegen an, dass Softwood-Fasern über eine höhere Festigkeit und eine erhöhte maximale Reißlänge im Vergleich zu Hardwood-Fasern verfügen sollen (vgl. Tabelle 2-2 und Tabelle 2-3, S. 18). Diese Angaben sind aber offensichtlich

nicht auf die Compouneigenschaften bei kurzfaserverstärkten spritzgegossenen Bauteilen übertragbar.

Die Aspect Ratio-Verteilung hat ebenfalls keinen Einfluss auf die mechanischen oder rheologischen Eigenschaften der Compounds. An dieser Stelle ist wichtiger, dass der mittlere Aspect Ratio (L/d-Verhältnis) oberhalb von 5 ist, so dass eine akzeptable Verstärkungswirkung der Cellulosefasern eintritt. Dies ist z.B. bei den Fasertypen BC200, BC1K, BC1K-Mix und FiF400 der Fall. Allerdings findet bei höheren Aspect Ratio-Werten auch eher eine Agglomeration der Cellulosefasern statt, dies ist insbesondere bei den Fasertypen BC1K, BC1K-Mix und FiF400 sehr stark ausgeprägt.

Die weiteren Einflüsse auf die Faseragglomeration werden in Kapitel 5.4 (Einfluss von Dispergierungszonen und Drehzahl) genauer dargestellt und diskutiert. In der Versuchsreihe werden auch die Einflüsse unterschiedlicher Dispergierungszonen auf die Agglomeration und die resultierenden Compouneigenschaften untersucht.

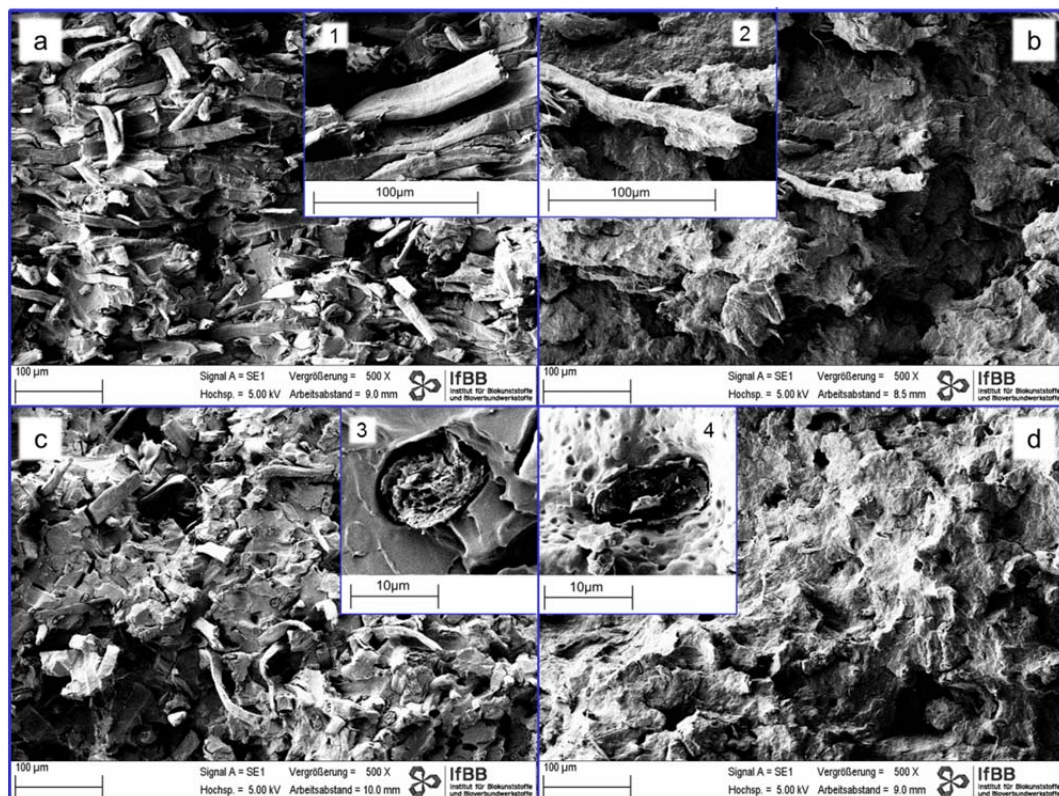


Abbildung 5-16: REM-Aufnahmen von Bruchflächen von PLA-BC1K-Compounds (a und c) und PP-BC1K-Compounds (b und d), Vergleich von Schmelzeplatten (a und b) und Normprüfstäben (c und d)

Zur Verdeutlichung der unterschiedlichen Faser-Matrix-Haftung bei den PP- und den PLA-Compounds werden vergleichende REM-Aufnahmen von Charpy-Bruchflächen erstellt. Hierzu erfolgt der Vergleich der Bruchflächen von Normprüfstäben und aus der Schmelze unmittelbar nach der Extrusion hergestellter Pressplatten (siehe Abbildung 5-16).

Bei dem Vergleich der Schmelzeplatten aus PLA-BC1K (a) und PP-BC1K (b) ist erkennbar, dass die Cellulosefasern bei dem PP-Compound sehr viel besser an die Matrix angebunden sind. Bei dem PLA-Compound haftet kein PLA an den einzelnen Fasern an der Bruchfläche an, die Fasern liegen frei vor. Dies zeigt sich auch deutlich bei dem unmittelbaren Vergleich der einzelnen Fasern im PLA- (1) und im PP-Compound (2) (1000-fache Vergrößerung). Die BC1K-Faser im PP-Compound ist vollständig von PP-Matrix umhüllt, während die BC1K-Faser im PLA-Compound komplett unbenetzt vorliegt und die Faseroberfläche deutlich auszumachen ist. Auch anhand der Bruchflächen der Normprüfkörper (c und d) ist dieses Phänomen zu beobachten. Bei dem PLA-BC1K-Compound (c) sind die einzelnen Cellulosefasern deutlich zu erkennen, die Faseroberfläche liegt frei. Die Cellulosefasern im PP-Compound (d) sind dagegen nur vereinzelt zu sehen, da das PP sie vollständig umhüllt. Der direkte Vergleich der Bruchflächen der Cellulosefasern in den Compounds (3 und 4, 5000-fache Vergrößerung) zeigt ebenfalls eine deutlich bessere Anbindung der Matrix an die Cellulosefasern beim PP-Compound (4). Zwischen PLA-Matrix und BC1K-Cellulosefaser ist eine deutliche Lücke erkennbar. Durch die bessere Anhaftung der Fasern an die Matrix kann auch die kritische Faserlänge (siehe Gleichung 2-1) deutlich abgesenkt werden, wodurch tendenziell mehr Fasern reißen und weniger Fasern aus dem Verbund herausgezogen werden. Dadurch steigt die Gesamtfestigkeit des Compounds.

Die deutlich geringere Faser-Matrix-Haftung zwischen PLA und Cellulosefasern sorgt für die nicht vorhandene bzw. nur sehr geringe Verstärkungswirkung der Cellulosefasern in der PLA-Matrix im Vergleich zu den PP-Compounds. Der verwendete Haftvermittler (MSA-g-PP) dient demnach für eine sehr gute Anbindung der Cellulosefasern an die PP-Matrix. Die Verwendung eines geeigneten Haftvermittlers für die PLA-Compounds ist unbedingt notwendig. Das Problem liegt hier darin, dass ein kommerziell erhältlicher Haftvermittler derzeit nicht existiert. Eigene Versuche mit einem MSA-g-PLA als Haftvermittler haben sich als nicht zielführend erwiesen, die Anwendung des MSA-g-PLA zeigte keine Verbesserung der mechanischen Kennwerte. Die Entwicklung eines geeigneten Haftvermittlers, dessen Kosten in einem finanziell sinnvollen Bereich liegen müssen, sollte vorangetrieben werden. Die Verwendung des in Kapitel 2.2.1.6 erwähnten L-lysine-diisocyanate (LDI) ist z.B. sehr kostspielig, ein Kilogramm des Haftvermittlers kostet ca. 2.000 US-\$ [62]. Auch bei einer geringen Zugabe von 0,65 wt.-% [84] bedeutet dies einen Mehrpreis für das PLA-Compound in Höhe von 23 US-\$/kg (umgerechnet ca. 17 €/kg). Ein solcher Mehrpreis wäre nicht akzeptabel.

5.4 Einfluss von Dispergierungszonen und Drehzahl

5.4.1 PP-Cellulosefaser-Compounds

Die Ergebnisse der Dispergierungsversuche für die PP-Cellulosefaser-Compounds sind in Abbildung 5-17 in der Übersicht dargestellt. In der Abbildung werden die Einflüsse der Schneckendrehzahl und der unterschiedlichen Dispergierungszonen auf die mechanischen und optischen Materialkennwerte gegenübergestellt. Der Kennwert Agglomerate bezieht sich auf die Schwankung des Drucks vor der Düse des Kapillarrheometers bei einer gleichbleibenden Stempelgeschwindigkeit und wird als Maß für die Dispergierung der Cellulosefasern herangezogen (siehe Kapitel 3.4.3.2, S. 46). Die roten Zahlen bezeichnen eine Veränderung der Kennwerte in eine unerwünschte Richtung (Verringerung der Werte bei den mechanischen Kennwerten und dem L*-Wert, Erhöhung bei b*-Wert und Agglomeraten), die grünen Zahlen kennzeichnen eine erwünschte Veränderung der Werte. Die Höhe der Veränderung ist in Zahlenwerten angegeben, die zugehörige Skala ist in der Abbildung 5-17 angegeben. Als Vergleichsgröße wird das in Versuchsreihe 3 (Charakterisierung der Einflüsse der Fasermorphologie) hergestellte PP-BC1K-Compound herangezogen. Alle Werte sind relativ zu diesem Compound angegeben.

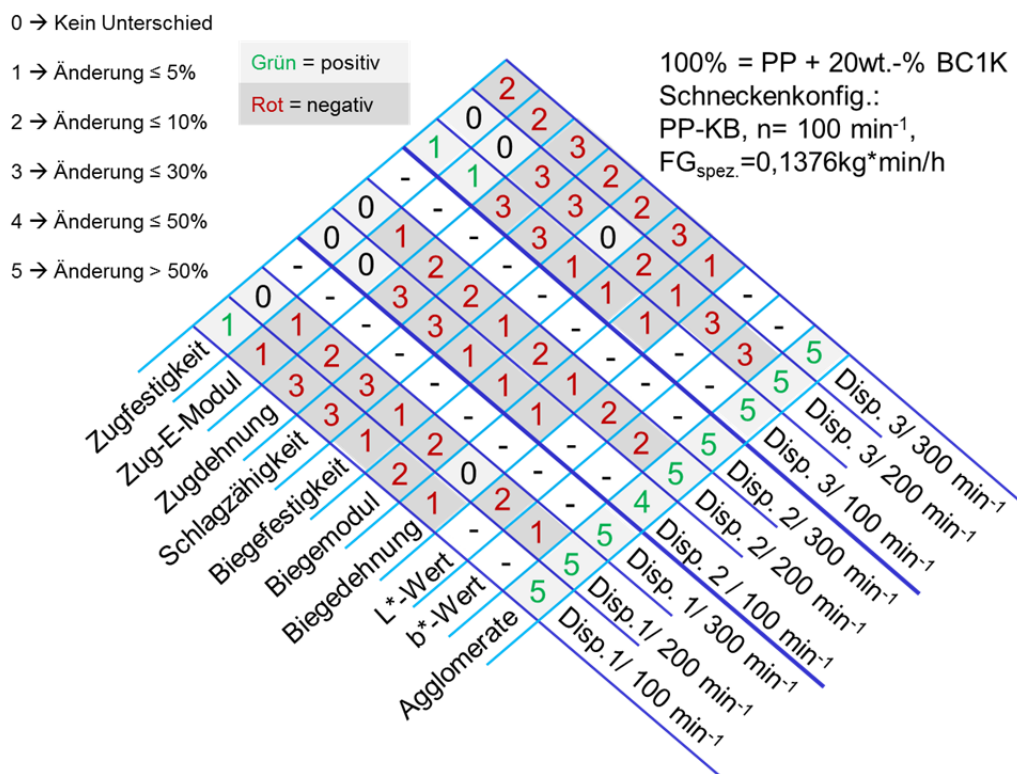


Abbildung 5-17: Übersicht der Einflüsse der Schneckendrehzahlen und der Faserdispergierungszonen auf die Materialeigenschaften der PP-BC1K-Compounds

Aus den Ergebnissen ist abzulesen, dass mit steigender Drehzahl und mit steigender Scherbeanspruchung (Disp.3 > Disp. 2 > Disp.1) die mechanischen Eigen-

schaften der PP-BC1K-Compounds tendenziell abnehmen.

Die Compounds der Versuchspunkte Disp.1/300min-1 und Disp.2/300min-1 konnten nicht vollständig charakterisiert werden, da es aufgrund der hohen Druckschwankungen beim Extrudieren häufig zu Strangabrissen kam. Deshalb wurde nur eine sehr geringe Probemenge hergestellt, die nicht zur Herstellung von Normprüfstäben ausreichte.

Auffällig ist jedoch, dass mit Ausnahme weniger Werte (Zugfestigkeit bei Disp.1/100min⁻¹ und Disp.3/100min⁻¹, sowie Zug-E-Modul bei Disp.3/100min⁻¹) die mechanischen Kennwerte nicht verbessert werden. In vielen Fällen werden die mechanischen Kennwerte sogar um bis zu 30% im Vergleich zum Compound PP-BC1K verringert. Insbesondere die Zugdehnung und die Schlagzähigkeit sind von dieser enormen Verringerung der Kennwerte betroffen. Die Ergebnisse für die Farbwerte (L*-und b*-Werte) und die Agglomerate werden noch gesondert dargestellt.

In Abbildung 5-18 ist der Einfluss der Dispergierungszone und der unterschiedlichen Drehzahlen auf das Druckverhältnis (Agglomerate) dargestellt.

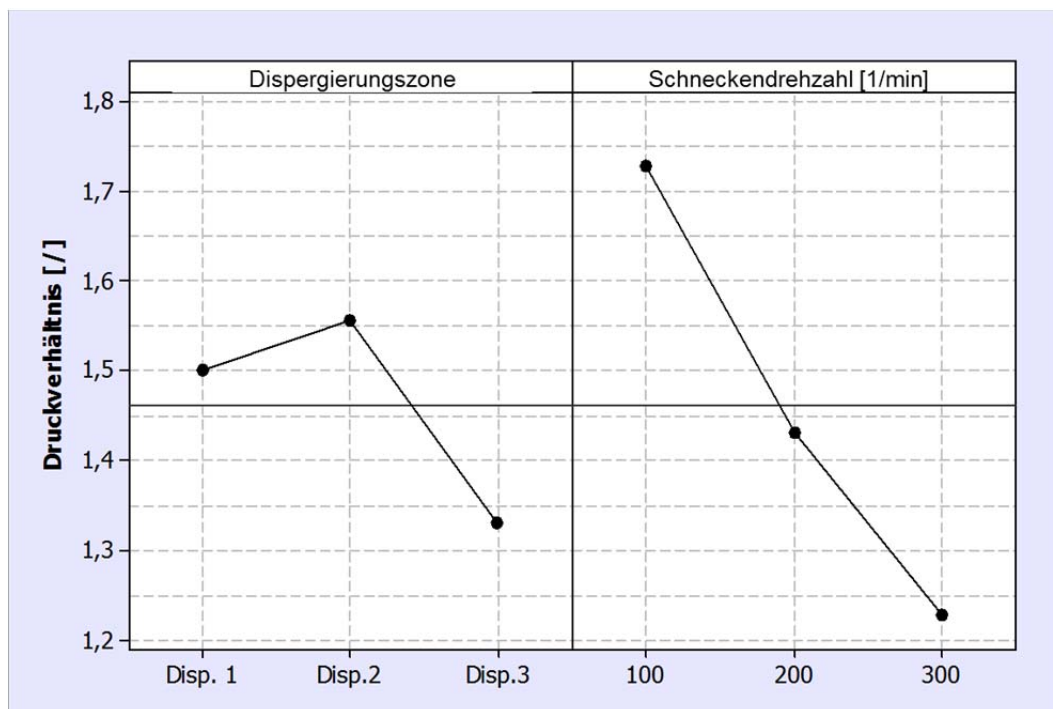


Abbildung 5-18: Einflüsse der Dispergierungszone und der Schneckendrehzahl auf das Druckverhältnis als Maß für die Agglomeration der Cellulosefasern für die PP-Compounds

Bei Verwendung der Dispergierungszone 1 ist der maximale Druck im Mittel 1,5-mal so hoch wie der minimale Druck während der Messung. Bei der Dispergierungszone 3 ist der maximale Druck nur 1,3-mal höher, als der Minimaldruck. Das höchste Verhältnis zwischen Maximal- und Minimaldruck wird bei der Dispergierungszone 2 erreicht. Bei der Verwendung dieser Dispergierungszone sind also am meisten Agglomerate im Compound vorhanden. Die Unterschiede zwischen

den Dispergierungszonen sind nicht sehr ausgeprägt.

Die Betrachtung des Einflusses der Schneckendrehzahl zeigt, dass mit zunehmender Schneckendrehzahl das Druckverhältnis abnimmt. Bei 200 min^{-1} liegt der Mittelwert bereits unterhalb des Gesamtmittelwerts aller Messungen. Wird die Drehzahl weiter erhöht (300 min^{-1}), nimmt das Druckverhältnis entsprechend weiter ab. Es sind also deutlich weniger Agglomerate in der Schmelze enthalten. Die anhand dieser Ergebnisse am besten geeignete Kombination zur Verringerung der Agglomerate ist somit die Verwendung der Faserdispergierungszone 3 bei einer Drehzahl von 300 min^{-1} .

In Abbildung 5-19 ist der Einfluss der unterschiedlichen Dispergierungszonen bei gleichbleibender Schneckendrehzahl auf die Farbwerte (L^* - und b^* -Wert) dargestellt. Als Vergleich dient hier erneut das PP-BC1K-Compound aus Versuchsreihe 3 (Charakterisierung der Einflüsse der Fasermorphologie).

Aus der Abbildung wird deutlich, dass mit zunehmendem Schereintrag ($\text{Disp.3} > \text{Disp. 2} > \text{Disp.1}$) die Helligkeit (L^* -Wert) der Compounds abnimmt und gleichzeitig die Gelbfärbung zunimmt (b^* -Wert). Weiterhin steigt mit zunehmender Drehzahl ebenfalls die Verfärbung der Compounds an, wie aus dem Vergleich zwischen $\text{Disp.1}/200 \text{ min}^{-1}$ und dem PP-BC1K-Compound zu schließen ist.

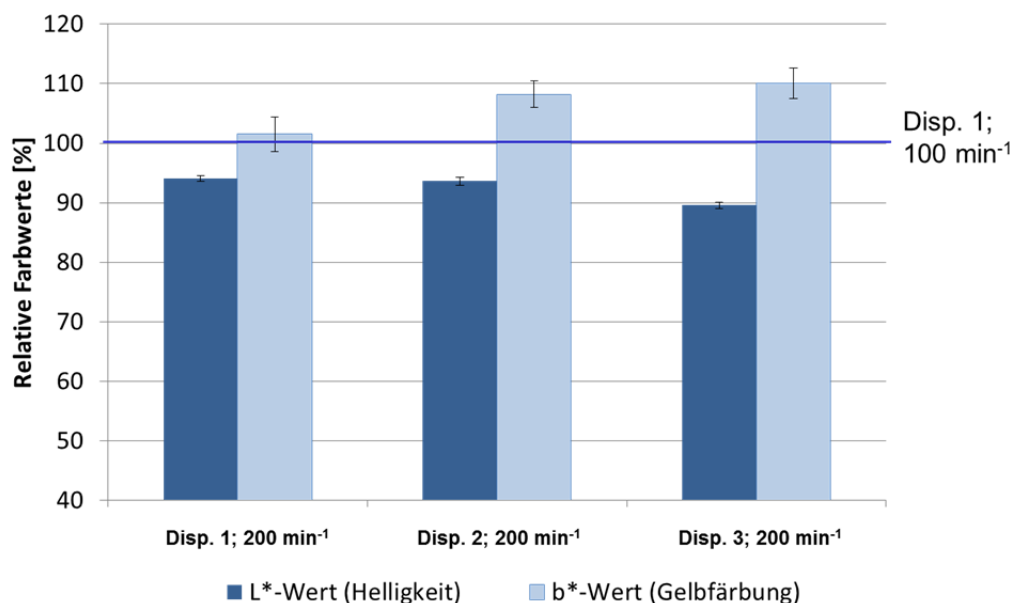


Abbildung 5-19: Einfluss der verschiedenen Dispergierungszonen auf die Farbwerte der Compounds im Vergleich zum PP-BC1K-Compound (Disp. 1; $n=100 \text{ min}^{-1}$)

Die geringste Verfärbung der Compounds ist demnach bei einer Drehzahl von 100 min^{-1} und der Verwendung der Dispergierungszone 1 zu verzeichnen.

5.4.2 PLA-Cellulosefaser-Compounds

In Abbildung 5-20 sind die Ergebnisse der Dispergierungsversuche für die PLA-Cellulosefaser-Compounds in der Übersicht dargestellt. Das Diagramm ist analog zu Abbildung 5-17 (S.102) zu lesen.

Die Ergebnisse zeigen generell eine Abnahme der mechanischen Eigenschaften des Materials bei zunehmender Scherwirkung der Faserdispergierungszonen (Disp.3 > Disp. 2 > Disp.1). Bei der Dispergierungszone 3 nehmen allerdings die Zugdehnung und die Schlagzähigkeit um 5-10% im Vergleich zum PLA-BC1K-Compound zu. Bei Verwendung der Dispergierungszone 1 nimmt der Biegemodul um 5-10% im Vergleich zu.

Die weiteren mechanischen Eigenschaften werden durch die Erhöhung der Scherwirkung und der Drehzahl verringert, vereinzelt sogar zwischen 30-50%. Die Farbwerte (L*-und b*-Wert) und die Auswirkungen der Schneckenkonfigurationen auf die Agglomeratbildung werden in weiteren Diagrammen genauer betrachtet.

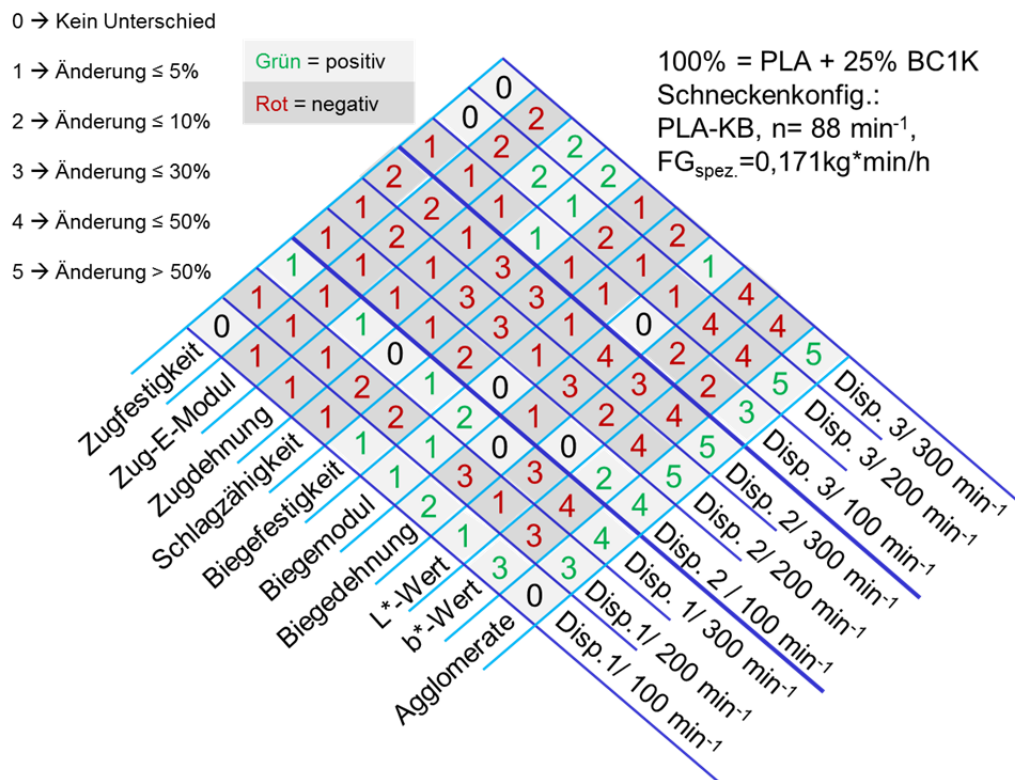


Abbildung 5-20: Übersicht der Einflüsse der Schneckendrehzahlen und der Faserdispergierungszonen auf die Materialeigenschaften der PLA-BC1K-Compounds

Die Einflüsse der Dispergierungszone und der Schneckendrehzahl auf das Druckverhältnis und somit auf die Agglomeratbildung sind in Abbildung 5-21 dargestellt.

Das Druckverhältnis der Dispergierungszone 1 ist mit einem Wert von 2,15 am

höchsten. Die beiden anderen Dispergierungszonen erreichen deutlich geringere Werte. Das Verhältnis zwischen Maximal- und Minimaldruck bei der Dispergierungszone 2 beträgt im Mittel nur 1,4. Der Wert der Dispergierungszone 3, die bemerkenswerterweise eine höhere Scherwirkung besitzt, ist geringfügig höher (ca. 1,5). Mit zunehmender Schneckendrehzahl nimmt das Druckverhältnis ab und somit nimmt auch der Anteil an Agglomeraten in den Compounds ab. Der höchste Unterschied ist hier bei einer Verdopplung der Schneckendrehzahl von 100 min^{-1} auf 200 min^{-1} zu verzeichnen. Bei einer weiteren Erhöhung der Drehzahl um 100 min^{-1} ist kein solch hoher Effekt zu beobachten. Das Druckverhältnis sinkt dann nur noch von 1,5 auf 1,3 ab. Die sinnvollste Variation wäre in diesem Fall zur Minimierung der Faseragglomerate die Verwendung der Dispergierungszone 2 mit einer Schneckendrehzahl von 200 min^{-1} .

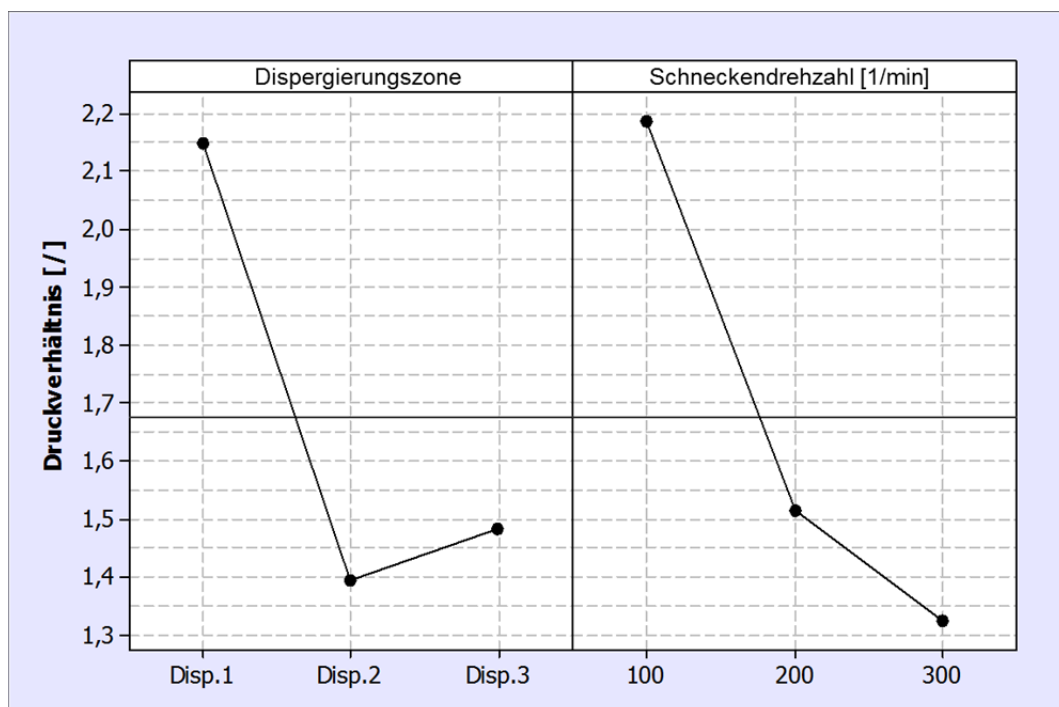


Abbildung 5-21: Einflüsse der Dispergierungszone und der Schneckendrehzahl auf das Druckverhältnis als Maß für die Agglomeration der Cellulosefasern für die PLA-Compounds

In Abbildung 5-22 sind die L*-und b*-Werte der Compounds im Verhältnis zum PLA-BC1K-Compound (100%) dargestellt.

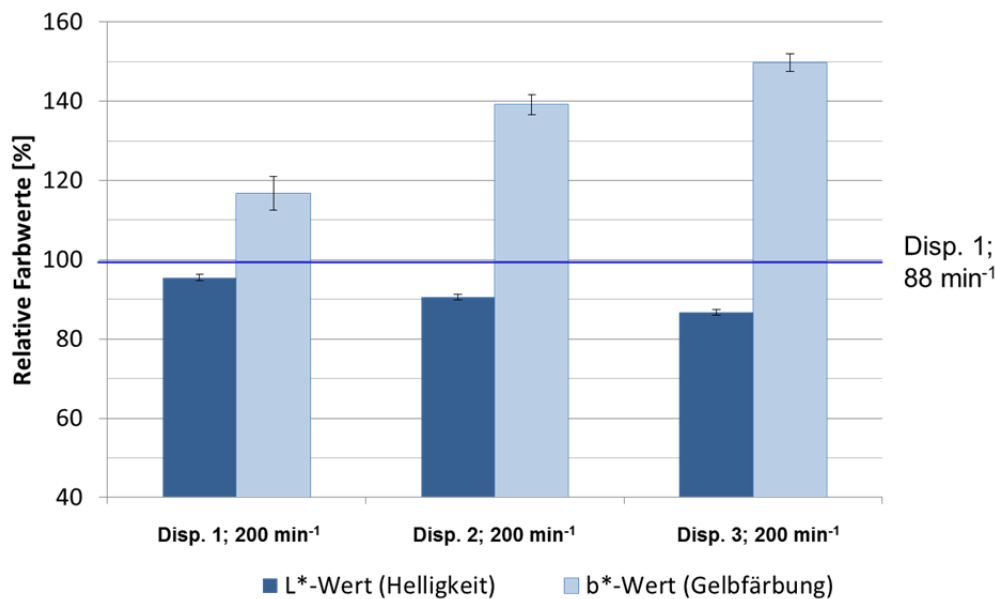


Abbildung 5-22: Einfluss der verschiedenen Dispergierungszonen auf die Farbwerte der Compounds im Vergleich zum PLA-BC1K-Compound (Disp. 1; $n=88 \text{ min}^{-1}$)

Die Ergebnisse zeigen, dass mit zunehmender Scherwirkung (Disp.3 > Disp. 2 > Disp.1) die L*-Werte herabgesenkt werden und gleichzeitig die b*-Werte enorm ansteigen. Das bedeutet eine zunehmende Schädigung der Fasern durch die erhöhte Scherung bei der Verarbeitung. Auch bei einer Zunahme der Drehzahl von 88 min^{-1} auf 200 min^{-1} bei der gleichen Dispergierungszone kann eine Zunahme des b*-Werts von ca. 18% verzeichnet werden. Mit erhöhter Drehzahl tritt also ebenfalls eine erhöhte Scherung und somit eine erhöhte Schädigung der Cellulosefasern ein.

5.4.3 Diskussion der Ergebnisse zu Dispergierungszonen und Drehzahl

Die Faserdispergierung in den Compounds kann durch die Erhöhung der Schnecken Drehzahlen sowie der Scherwirkung der Dispergierungszonen deutlich verbessert werden. Dies geht allerdings mit einer Abnahme der mechanischen und optischen Eigenschaften einher. Die Abnahme der mechanischen Eigenschaften, insbesondere der Steifigkeit, Festigkeit und der Schlagzähigkeit, können mit einer Abnahme der mittleren Faserlänge begründet werden. BEAUGRAND und BERZIN haben z.B. festgestellt, dass bei einer Erhöhung der Drehzahl von 100 min^{-1} auf 400 min^{-1} die mittlere Länge der in den Untersuchungen verwendeten Hanffasern um $1/8$ reduziert wird, gleichzeitig sinkt der E-Modul um ca. 20% [13]. Die Abnahme der Helligkeit und die gleichzeitige Zunahme der Gelbfärbung der Compounds kann mit dem erhöhten Eintrag von Scherenergie erklärt werden, wodurch sich die Cellulosefasern stärker erhitzen und folglich dunkler färben. Im Vergleich zu den PP-Compounds ergibt sich eine deutlichere Verfärbung bei den PLA-Compounds, dies hängt sehr wahrscheinlich mit dem höheren Faseranteil und dem tendenziell höheren Spezifischen Mechanischen Energieeintrag der

PLA-Compounds zusammen (vgl. Tabelle 5-1, S. 66 und Tabelle 5-3, S. 73).

Für die Compoundierung von Cellulosefasern mit einem L/d-Verhältnis von >5 , die zu erhöhter Agglomeration bei der Extrusion neigen, ist die Dispergierungszone 2 mit einer Drehzahl von 200 min^{-1} (PP-CF-Compounds) bzw. 100 min^{-1} (PLA-CF-Compounds) die beste Kompromisslösung. Bei den PP-Compounds wird bei der Verwendung dieser Dispergierungszone eine deutliche Abnahme der Agglomeration der Cellulosefasern festgestellt, gleichzeitig nehmen die mechanischen und optischen Eigenschaften in einem moderaten Rahmen ($<10\%$ Abnahme zum Vergleichscompound) ab. Die PLA-Compounds sollten besser bei einer Drehzahl von nur 100 min^{-1} verarbeitet werden, da bei einer Drehzahl von 200 min^{-1} bereits eine starke Verfärbung der Cellulosefasern eintritt (Erhöhung des b^* -Wertes um 40%) und die mechanischen Eigenschaften um bis zu 30% abnehmen. Der Unterschied im Einfluss der Drehzahlen und somit des Spezifischen Füllgrades (bei gleichbleibendem Durchsatz) zwischen PP-BC1K- und PLA-BC1K-Compounds spiegelt sehr gut die Ergebnisse aus Kapitel 5.1 wider. Auch bei diesen Untersuchungen wirkt sich die Veränderung des Füllgrades bei den PLA-Compounds stärker auf die verfahrenstechnischen und auch die optischen Eigenschaften aus.

6 Einführung, Anpassung und Diskussion verschiedener Modelle zur Vorhersage der Compoundeigenschaften

6.1 Modell zur Berechnung der Compound-Viskositäten

6.1.1 Einführung eines Modells zur Berechnung der Compound-Viskositäten

Die offensichtliche Abhängigkeit der Viskosität der Cellulosefaser-Compounds von der Fasermorphologie soll im Folgenden verifiziert werden. Hierzu wird die relative Viskosität $\eta_{rel.}$ als Maß für das Verhältnis von Compound-Viskosität η_c zur Viskosität des Matrixpolymers η_m eingeführt [131], siehe Gleichung 6-1.

$$\eta_{rel.} = \frac{\eta_c}{\eta_m} \quad \text{Gleichung 6-1}$$

Die Berechnung der Viskosität von η_m und η_c erfolgt nach Gleichung 2-7 (S. 29). Die jeweiligen scheinbaren Scherraten $\dot{\gamma}$ und scheinbaren Schubspannungen τ werden mittels der durchgeführten MVR-Messungen bestimmt (nach [141]), die Berechnungsgrundlagen hierzu sind in Gleichung 6-2 und Gleichung 6-3 angegeben.

$$\dot{\gamma} = \frac{4 \dot{V}}{\pi R_D^3} = [s^{-1}] \quad \text{Gleichung 6-2}$$

Mit \dot{V} = Volumendurchsatz in mm³/s, R_D = Radius der Düse

$$\tau = \frac{R_D \Delta p}{2 L_D} = [Pa] \quad \text{Gleichung 6-3}$$

Mit L_D = Länge der Düse, Δp = Druckunterschied, aufgebrachter Druck

Der aufgebrachte Druck berechnet sich nach Gleichung 6-4.

$$\Delta p = \frac{4 m g}{\pi D_s} = [Pa] \quad \text{Gleichung 6-4}$$

Mit m = aufgebrachte Prüfmasse, g = Erdbeschleunigung, D_s = Durchmesser des Prüfstempels

Für die Berechnung der relativen Viskosität können verschiedene Modelle verwendet werden, ein Modell zur Berechnung der Viskosität von Fasersuspensionen wurde von BRODNYAN beschrieben [61]. In dem Modell (siehe Gleichung 6-5) wird auch das L/d-Verhältnis der verwendeten Fasern berücksichtigt.

$$\eta_{rel.M} = e^{\left(\frac{2,5 V_f + 0,4 ((L/d)-1)^{1,48} V_f}{1 - k_{rV} V_f} \right)} \quad \text{Gleichung 6-5}$$

Der Faktor k_{rV} in der Gleichung ist ein Anpassungsfaktor, der mit dem Wert 1 angenommen wird. V_f ist der volumetrische Faseranteil im Compound.

6.1.2 Verifizierung und Anpassung des Viskositäts-Modells

Für die Verifizierung des vorgestellten Modells zur Berechnung der relativen Viskosität der Cellulosefaser-Compounds werden die Werte, die nach dem Modell von BRODNYAN berechnet werden, mit den tatsächlich ermittelten relativen Viskositätswerten (siehe Gleichung 6-1 bis Gleichung 6-4) verglichen. Für die Berechnung der Viskositäten werden die mittleren Aspect-Ratio-Werte aus Tabelle 4-9 verwendet.

In Abbildung 6-1 sind die berechneten relativen Viskositätswerte für die PP- und PLA-CF-Compounds in Relation zu den experimentell ermittelten relativen Viskositäten dargestellt. Die Messwerte werden jeweils als 100% festgesetzt.

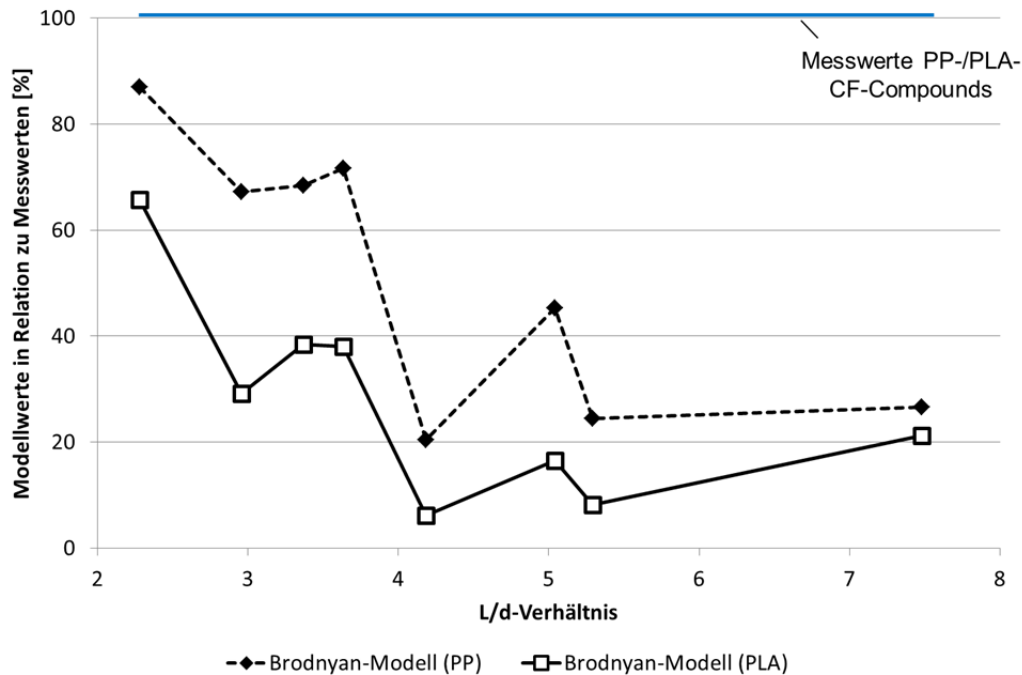


Abbildung 6-1: Vergleich der Modellwerte für die relative Viskosität der PP- und PLA-CF-Compounds mit den tatsächlich gemessenen Werten

Wie deutlich aus der Darstellung zu erkennen ist, wird der Abstand zwischen berechneten Werten und ermittelten Werten mit zunehmendem L/d-Verhältnis der Fasern größer. Bei einem L/d-Verhältnis >5 scheint keine weitere Zunahme des Abstandes mehr zu erfolgen. Die Differenz der Modellwerte zu den Messwerten ist bei den PLA-CF-Compounds deutlich höher, als bei den PP-CF-Compounds. Dies liegt wahrscheinlich an dem höheren Faservolumenanteil der PLA-CF-Compounds, obgleich dieser in die Berechnung des Modells nach BRODNYAN einfließt.

Aufgrund der enormen Abweichung der berechneten Modellwerte wird dieses Modell über den Faktor k_{rV} angepasst. Die Anpassung erfolgt über die Größe $Q_{rel.}$, die die Verteilung des Aspect Ratio (L/d-Verhältnis) berücksichtigt (siehe Gleichung 3-1, S. 41). Die Berechnung des Faktors k_{rV} erfolgt für die PP- und PLA-

CF-Compounds nach Gleichung 6-6 und Gleichung 6-7.

$$k_{rV(PP)} = -2,94 + 2,66 Q_{rel.} - 0,221 (Q_{rel.})^2 \quad \text{Gleichung 6-6}$$

$$k_{rV(PLA)} = -0,67 + 1,48 Q_{rel.} - 0,139 (Q_{rel.})^2 \quad \text{Gleichung 6-7}$$

Durch die Anpassung ergibt sich das angepasste Modell $\eta_{rel.M(PP)*}$ bzw. $\eta_{rel.M(PLA)*}$. Die angepassten Modelle zur Berechnung der relativen Viskosität der PP- und PLA-CF-Compounds sind in der Abbildung 6-2 bzw. Abbildung 6-3 im Vergleich zu den ermittelten tatsächlichen relativen Viskositäten gegenübergestellt.

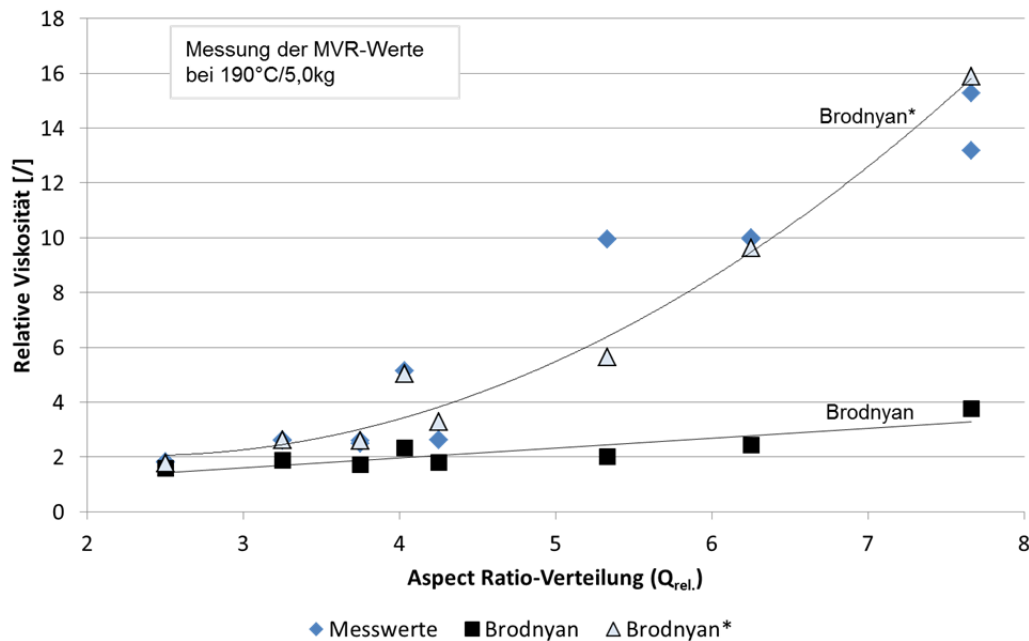


Abbildung 6-2: Relative Viskosität der PP-CF-Compounds; Vergleich der Messwerte mit den berechneten Werten nach Brodnyan und dem angepassten Modell (*)

Aus der Abbildung ist eindeutig die zu geringe Steigung der berechneten relativen Viskosität nach dem Brodnyan-Modell zu erkennen. Es wird demnach von einem zu geringen Einfluss der Fasermorphologie ausgegangen. Durch die Anpassung des Modells (Brodnyan*) werden die berechneten relativen Viskositätswerte nach oben korrigiert. Die Realität wird dadurch deutlich besser abgebildet. Die Aspect Ratio-Verteilung ($Q_{rel.}$) ist ein sehr gutes Maß für die Anpassung des Brodnyan-Modells. Die mittlere prozentuale Abweichung der berechneten relativen Viskositätswerte von den Messwerten beträgt für die PP-CF-Compounds 11,3%.

Die Ergebnisse für die relative Viskosität der PLA-CF-Compounds in Abbildung 6-3 zeigen eine ähnliche Tendenz wie die der PP-CF-Compounds.

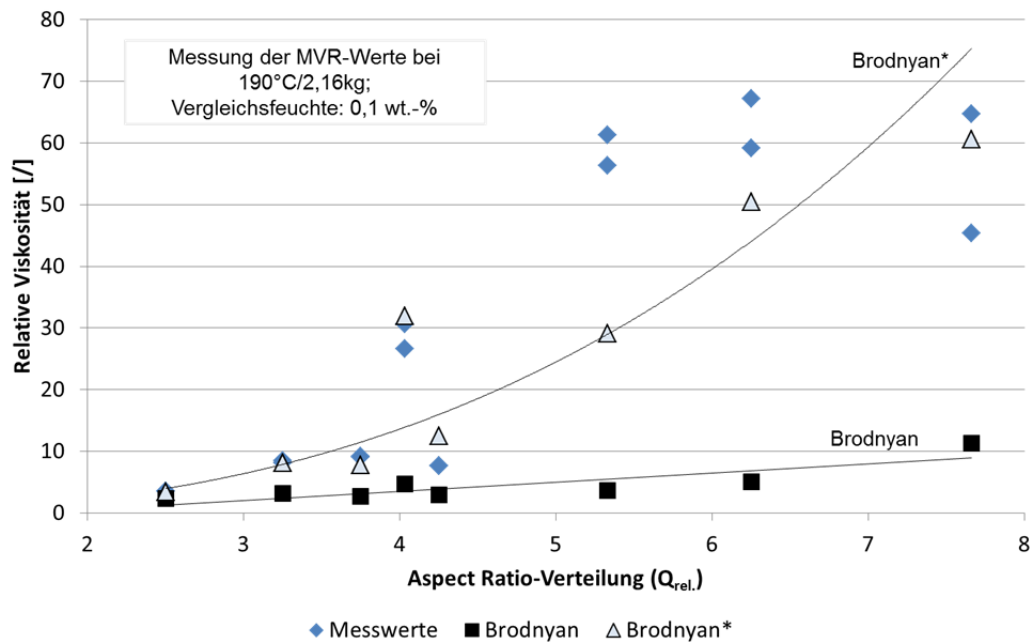


Abbildung 6-3: Relative Viskosität der PLA-CF-Compounds; Vergleich der Messwerte mit den berechneten Werten nach Brodnyan und dem angepassten Modell (*)

Die Anpassung des Modells von Brodnyan bewirkt eine deutliche Erhöhung der Werte für die relative Viskosität, die die experimentell ermittelten Werte besser widerspiegelt. Die Darstellung über die Aspect Ratio-Verteilung ($Q_{rel.}$) führt die Abhängigkeit der relativen Viskosität von dieser Größe vor Augen. Die mittlere prozentuale Abweichung von den gemessenen Werten beträgt für das angepasste Modell (Brodnyan*) 23,2%.

Bei dem Vergleich der Ergebnisse von PP- und PLA-CF-Compounds fällt auf, dass bei beiden Matrixsystemen ab einer Aspect Ratio-Verteilung von >5 die relative Viskosität stark ansteigt. Bei den PLA-CF-Compounds ist die relative Viskosität insgesamt höher. Dies ist durch den höheren volumetrischen Faseranteil der PLA-CF-Compounds bedingt. Außerdem wurde der MVR-Wert der PLA-Compounds bei einer geringeren Belastung (2,16 kg) bestimmt, wodurch eine geringere Schubspannung und somit auch eine geringere Scherrate resultiert. Dadurch werden die Fasern während des Fließens weniger ausgerichtet und die Viskosität ist scheinbar höher. Die höhere prozentuale Abweichung des angepassten Modells (Brodnyan*) für die PLA-CF-Compounds ist sehr wahrscheinlich den Korrekturen aufgrund der feuchtigkeitsabhängigen Viskositätswerte des PLA geschuldet (siehe Ausführungen in Kapitel 3.4.2.1, S. 45). Die Werte sind ohnehin nur in Relation zu sehen und nur bei der Vergleichstemperatur (190°C) und der entsprechenden Belastung reproduzierbar. Für weitergehende Untersuchung der Einflüsse (bspw. Einfluss des Faseranteils) müssen ergänzende Untersuchungen durchgeführt werden.

6.2 Modelle zur Berechnung der E-Moduln

6.2.1 Einführung verschiedener Modelle zur Berechnung der E-Moduln

6.2.1.1 Modell von Cox-Krenchel

Das Modell von COX und KRENCHEL basiert auf der Mischungsregel. Hierbei wird davon ausgegangen, dass die Eigenschaften von Matrix und Faser anteilig vom Volumen in die Composite-Eigenschaften eingehen. KELLY und TYSON haben diese Theorie auf die Zugfestigkeiten von Composites aus Wolfram- bzw. Molybdän-Drähten in Verbindung mit einer Kupfer-Matrix angewendet [72]. Die Regel kann aber auch auf die Berechnung von E-Moduln oder von Querkontraktionszahlen angewendet werden [147]. Die allgemeine Schreibweise ist wie folgt (Gleichung 6-8):

$$P_c = V_f P_f + (1 - V_f) P_m \quad \text{Gleichung 6-8}$$

P steht hierbei für die jeweilige Eigenschaft, V für den Volumenanteil, die Indices stehen für c = Composite, f = Faser und m = Matrix.

Die einfache Mischungsregel gilt jedoch nur für endlosfaser- und linear verstärkte Composites. Weiterhin wird von einer perfekten Übertragung der Grenzflächenspannung zwischen Matrix und Faser ausgegangen. Cox führt den Faktor η_L ein, der die verringerte Effizienz bei der Spannungsübertragung von der Matrix auf die Fasern aufgrund der begrenzten Faserlänge berücksichtigt [28]. In Gleichung 6-9 ist die Berechnung des Faktors η_L dargestellt.

$$\eta_L = \left[1 - \frac{\tanh(\frac{\beta L}{2})}{\beta L/2} \right] \quad \text{Gleichung 6-9}$$

L steht hierbei für die mittlere Faserlänge, die Berechnung des Faktors β wird in Gleichung 6-10 erläutert [20].

$$\beta = 2/d \sqrt{\left[\frac{2G_m}{E_f \ln\left(\frac{\pi}{X_i V_f}\right)} \right]} \quad \text{Gleichung 6-10}$$

E_f ist der E-Modul der Faser, d ist die Faserdicke, X_i ist ein Faktor für die Faserausrichtungsgeometrie, dieser wird mit 4,0 angenommen [20]. Der Wert für den Schubmodul der Matrix, G_m , kann nach Gleichung 6-11 berechnet werden [50].

$$G_m = \frac{E_m}{2(1 + \nu)} \quad \text{Gleichung 6-11}$$

Hierbei ist E_m der E-Modul der Matrix, ν die Poissonzahl oder auch Querkontraktionszahl, die die Querschnittsreduzierung von Materialien bei einer spannungs-

bedingten Ausdehnung berücksichtigt [50]. Der Wert kann zwischen 0,35 [8] und 0,4 [20] liegen.

KRENCHEL hat durch die Einführung des Faktors η_0 die Orientierung der Fasern in der Matrix mit in die Betrachtung der E-Modul-Berechnung einbezogen [81]. Die Berechnung erfolgt analog der Gleichung 6-12.

$$\eta_0 = \sum_n a_n \cos^4 \phi_n \quad \text{Gleichung 6-12}$$

Bei der Berechnung ist a_n die Faser-Fraktion mit dem Ausrichtungswinkel ϕ_n , bezogen auf die Achse der Belastungsrichtung. Bei einer zweidimensionalen Faserausrichtung in der Ebene ist $\eta_0=3/8$ [20] [46], bei einer dreidimensionalen Faserausrichtung ist $\eta_0=1/5$ [8] [46]. Nach BAIARDO et al. ist η_0 der einzige unbekannte Faktor in der Gleichung. Dieser darf variiert werden, um die experimentell ermittelten Werte bestmöglich an das Modell anzupassen. In der Arbeit von BAIARDO wurde für $\eta_0=0,194$ ermittelt, was nahe an dem Wert von $1/5$ für 3-dimensional zufällig verteilte Fasern liegt [8].

Durch die Anwendung der oben aufgeführten Faktoren η_L und η_0 ergibt sich für die Berechnung des E-Moduls des Compounds E_c nach dem Modell von Cox-Krenchel folgende Gleichung 6-13:

$$E_c = \eta_0 \eta_L V_f E_f + (1 - V_f) E_m \quad \text{Gleichung 6-13}$$

Das Cox-Krenchel-Modell ist weit verbreitet und wird vielfach zur Abschätzung von E-Modul-Kennwerten verwendet [8] [20] [23] [46] [118] [147].

6.2.1.2 Modell von Cox-Krenchel (modifiziert)

In der Arbeit von TAHA werden verschiedene Modelle mit experimentell ermittelten Werten verglichen. Hierbei werden die besten Übereinstimmungen mit dem Modell von Cox-Krenchel gefunden. Jedoch wird laut TAHA bei dem Modell von Cox-Krenchel der nichtlineare Verlauf der Composite-Steifigkeit bei höheren Faservolumenanteilen nicht berücksichtigt [147].

Es wird angenommen, dass die Fasern bei höheren Faservolumenanteilen in der Matrix vermehrt agglomerieren. Somit kann die Matrix die einzelnen Fasern nicht mehr vollständig umschließen. Dadurch werden die auftretenden Kräfte nicht optimal von der Matrix auf die Fasern übertragen. Bei Kurzfaservercomposites muss demnach das maximal mögliche Faservolumen V_f^* beachtet werden, oberhalb dessen zwangsläufig eine Agglomeration stattfindet [147].

Aufgrund dieser Beobachtungen wird von Taha der Agglomerationsfaktor η_a eingeführt (Gleichung 6-14).

$$\eta_a = 1 - (cV_f)^n \quad \text{Gleichung 6-14}$$

Der Exponent n in der Gleichung berücksichtigt die Mischbedingungen bei der

Compoundierung, für ein PP-Sisal-System liegt dieser bei 2 [34]. Die Ermittlung dieses Exponenten wird nicht weiter erläutert. Der Wert des Faserpackungsfaktors c kann mithilfe des Kehrwertes des Faktors p nach folgender Gleichung 6-15 berechnet werden [147]:

$$c = \frac{1}{p} = \frac{1}{\pi/4} \quad \text{Gleichung 6-15}$$

In der weiteren Betrachtung wird von TAHA darauf hingewiesen, dass bei der Anwendung des Faktors η_a der Faktor für die Orientierung der Fasern $\eta_0=1$ sein muss, da dies eine bestmögliche Anpassung der Messwerte an das Modell bewirkt und die Orientierung der Fasern nur einen geringen Einfluss auf die Steifigkeit der Compounds habe. Daraus folgt für das modifizierte Cox-Krenchel-Modell von Taha die Gleichung 6-16 [147]:

$$E_c = \eta_a \eta_L V_f E_f + (1 - V_f) E_m \quad \text{Gleichung 6-16}$$

Der nicht vorhandene Einfluss des Orientierungsfaktors η_0 wird damit erklärt, dass während der E-Modulmessung im elastischen Bereich des Composites bei geringen Dehnungen kein Faser-Pullout oder Versagen der Komponenten und auch keine Faser-Matrix-Verschiebung stattfindet. Diese Faktoren werden von der Faserorientierung beeinflusst, der E-Modul jedoch nicht [147].

6.2.1.3 Modell von Tsai-Pagano

Nach TSAI und PAGANO wird der E-Modul von Verbundwerkstoffen mit zufällig orientierten diskontinuierlichen Fasern anteilig aus dem E-Modul längs und quer zur Belastungsrichtung ermittelt [50]. Die Berechnung erfolgt nach Gleichung 6-17 [15]:

$$E_c = \frac{3}{8} E_{11} + \frac{5}{8} E_{22} \quad \text{Gleichung 6-17}$$

Dabei ist E_{11} der E-Modul in Längsrichtung und E_{22} der E-Modul in Querrichtung. Die beiden E-Moduln berechnen sich nach Gleichung 6-18 und Gleichung 6-19 [15].

$$E_{11} = \frac{1+(2(L/d)\eta_{lo}V_f)}{(1-\eta_{lo}V_f)} E_m \quad \text{Gleichung 6-18}$$

$$E_{22} = \frac{1+2\eta_{tr}V_f}{1-\eta_{tr}V_f} E_m \quad \text{Gleichung 6-19}$$

Die beiden Faktoren η_{lo} und η_{tr} für die longitudinale und transversale Ausrichtung werden nach Gleichung 6-20 und Gleichung 6-21 berechnet [15].

$$\eta_{lo} = \frac{(E_f/E_m)-1}{(E_f/E_m)+2(L/d)} \quad \text{Gleichung 6-20}$$

$$\eta_{tr} = \frac{(E_f/E_m)-1}{(E_f/E_m)+2} \quad \text{Gleichung 6-21}$$

Diese Gleichungen wurden für die Abschätzung von E-Moduln von Borfaser-Epoxidharz-Composites verwendet, in denen die Fasern zufällig orientiert vorliegen. Die Ergebnisse der Berechnung zeigten hervorragende Übereinstimmung mit den experimentell erhaltenen Daten [50].

6.2.1.4 Modell von Halpin-Tsai

Das Modell von HALPIN und TSAI wird ebenfalls häufig verwendet. Es ist eine Zusammenstellung aus empirischen Beziehungen, die die Materialeigenschaften der Composites ausdrücken. In das Modell fließen die Eigenschaften der Matrix und der Verstärkungskomponente ein. Weiterhin werden die volumetrischen Anteile und die geometrischen Eigenheiten der Faserkomponente berücksichtigt [147]. Die Berechnung des E-Moduls nach dem Modell von Halpin-Tsai erfolgt nach folgender Gleichung 6-22 [23]:

$$E_c/E_m = \frac{1+\xi\eta_{lo}V_f}{1-\eta_{lo}\psi V_f} \quad \text{Gleichung 6-22}$$

Der Faktor ξ ist ein vollständig empirisch ermittelter Wert, der bei zufällig angeordneten diskontinuierlichen Fasern mit $\xi = 2L/d$ angenommen wird [147]. Die Berechnung des Faktors η_{lo} erfolgt nach Gleichung 6-20, der Faktor ψ berechnet sich nach Gleichung 6-23 [23].

$$\psi = 1 + \left(\frac{1-p}{p^2}\right) V_f \quad \text{Gleichung 6-23}$$

Der maximale Faservolumenanteil p berechnet sich gemäß der Gleichung 6-15 [50].

6.2.2 Gegenüberstellung der Modelle

Die verschiedenen Modelle aus Kapitel 6.2.1 werden auf die PP- und PLA-CF-Compounds angewendet. Dabei werden folgende Kennwerte verwendet: Die E-Moduln der Matrices betragen 1300 MPa (PP) bzw. 3630 MPa (PLA). Der E-Modul der Cellulosefasern beträgt 72 GPa [160], der Faseranteil 0,13 (PP) bzw. 0,215 (PLA). Für die Poissonzahl ν wird der Wert 0,4 verwendet. Für die Berechnung der E-Moduln werden die mittleren Aspect-Ratio-Werte aus Tabelle 4-9 verwendet.

In der Abbildung 6-4 sind die verschiedenen berechneten Werte für die PP-Cellulosefaser-Compounds im Vergleich zu den tatsächlich ermittelten E-Modul-Werten (E-Modul PP-CF (real)) dargestellt.

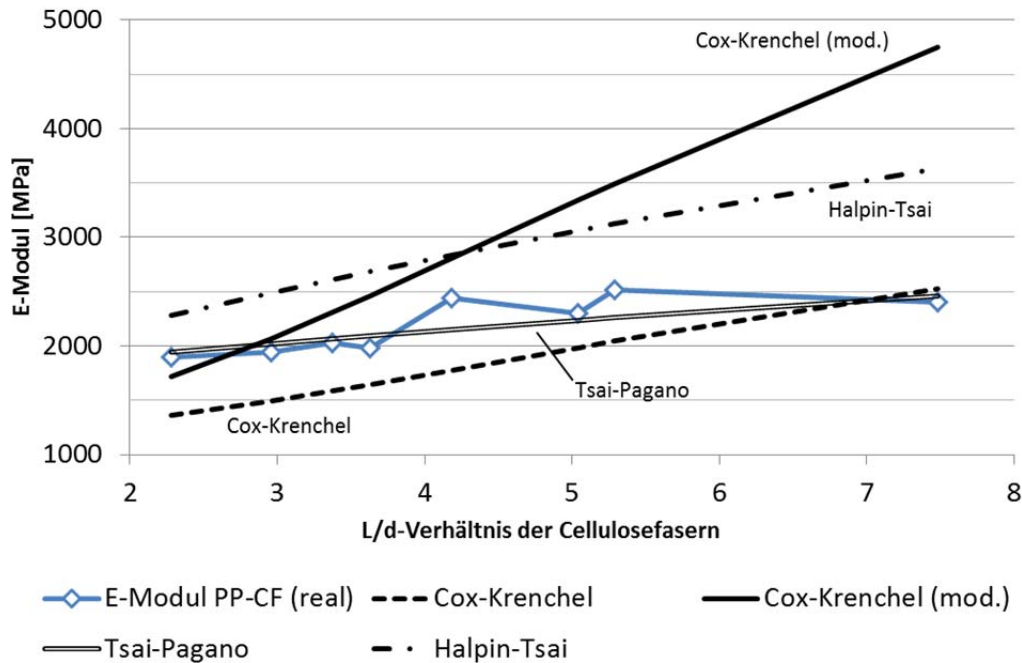


Abbildung 6-4: Vergleich der tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte der PP-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Modellwerten

Das Modell von Cox-Krenchel weist im unteren L/d-Bereich der Cellulosefasern einen zu gering berechneten E-Modul-Wert auf. Bei einem höheren L/d-Verhältnis stimmen die Messwerte jedoch mit den berechneten Werten besser überein. Das von TAHA modifizierte Cox-Krenchel-Modell zeigt dagegen im unteren Bereich der L/d-Verhältnisse eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Werten. Bei höheren L/d-Verhältnissen der Cellulosefasern wird allerdings ein viel zu hoher E-Modul-Wert angenommen, der die gemessenen Werte um mehr als das Doppelte übersteigt. Das Modell von Tsai-Pagano zeigt eine sehr gute Übereinstimmung der berechneten Werte mit den tatsächlich gemessenen E-Modul-Werten auf. Die Berechnungen nach dem Modell von Halpin-Tsai führen zu erhöhten E-Modul-Werten im Vergleich zu den Messwerten. Auffällig ist hierbei, dass die Steigung der Gerade des Halpin-Tsai-Modells sehr ähnlich zu der des Cox-Krenchel-Modells ist. Jedoch ist der Schnittpunkt mit der y-Achse um ca. 900 MPa nach oben versetzt.

In Abbildung 6-5 sind die tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte der PLA-Cellulosefaser-Compounds (E-Modul PLA-CF (real)) mit den berechneten Werten der verschiedenen vorgestellten Modelle gegenübergestellt.

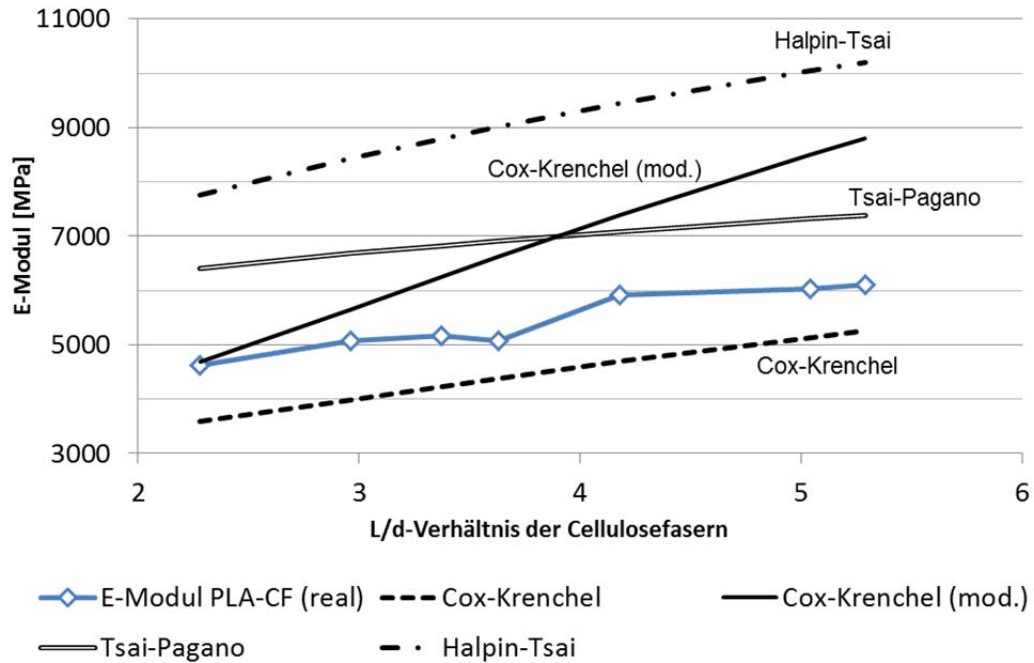


Abbildung 6-5: Vergleich der tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte der PLA-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Modellwerten

Die Anwendung des Modells von Cox-Krenchel bewirkt E-Modul-Werte, die deutlich niedriger liegen, als die tatsächlich gemessenen Werte. Dieses Erscheinungsbild ist ähnlich zu dem, das bei den PP-CF-Compounds beobachtet wurde. Das modifizierte Modell von Cox-Krenchel weist ebenfalls die gleiche Charakteristik wie bei den PP-CF-Compounds auf. Der berechnete Wert im niedrigen L/d-Verhältnis stimmt sehr gut mit dem Messwert überein. Bei höheren L/d-Verhältnissen übersteigen die Modellwerte jedoch zunehmend die gemessenen E-Modul-Werte. Das Modell von Tsai-Pagano erzeugt höhere E-Modul-Werte als tatsächlich ermittelt werden. Die Steigung der Geraden ist vergleichbar mit der Geraden aus der Gegenüberstellung der PP-CF-Compounds. Die berechneten Werte aus dem Halpin-Tsai-Modell sind ebenfalls deutlich höher, als die tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte der PLA-CF-Compounds.

6.2.3 Anpassung der Modelle zur Berechnung der E-Modul-Werte

6.2.3.1 Anpassung des Modells von Cox-Krenchel

Aufgrund der Tatsache, dass die berechneten Werte des Cox-Krenchel-Modells die tatsächlich gemessenen Werte sowohl bei den PP- als auch bei den PLA-CF-Compounds nicht ausreichend abgebildet haben, soll das Modell angepasst werden. Es erfolgt eine empirische Anpassung, die die Modellwerte nach oben korrigieren soll und den Einfluss des L/d-Verhältnisses der Cellulosefasern stärker berücksichtigt. Es wird der Faktor η_{CK} eingeführt, wie in Gleichung 6-24 dargestellt.

$$E_{c*} = \eta_{CK} \eta_0 \eta_L V_f E_f + (1 - V_f) E_m \quad \text{Gleichung 6-24}$$

Der Faktor η_{CK} berechnet sich für die PP- und PLA-CF-Compounds unterschied-

lich. Die empirisch ermittelten Werte für die verschiedenen Matrices sind in Gleichung 6-25 und Gleichung 6-26 beschrieben.

$$\eta_{CK(PP)} = 5,31 - 1,21 L/d + 0,085 (L/d)^2 \quad \text{Gleichung 6-25}$$

$$\eta_{CK(PLA)} = 4,66 - 1,31 L/d + 0,132 (L/d)^2 \quad \text{Gleichung 6-26}$$

Durch die Faktoren werden einerseits die höheren gemessenen E-Modul-Werte bei sehr niedrigen L/d-Verhältnissen berücksichtigt. Andererseits wird durch die Reduzierung mit steigendem L/d-Verhältnis bewirkt, dass die Steigung der Gesamtkurve an den Verlauf der gemessenen E-Modul-Werte angeglichen wird. Die zusätzliche quadratische Einbeziehung des L/d-Verhältnisses bewirkt eine verbesserte Anpassung an die Messwerte.

6.2.3.2 Anpassung des erweiterten Modells von Cox-Krenchel

Das erweiterte Modell von Cox-Krenchel soll über die Angleichung des Agglomerationsfaktors η_a an die tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte angepasst werden. Der Faktor berechnet sich analog zu der Gleichung 6-14 auch über den Exponenten n , der die Mischbedingungen bei der Extrusion berücksichtigt. Dieser Wert soll für die Modellanpassung variiert werden, die neue Bezeichnung ist n_E . Die Grundlage für die Variation dieses Parameters ist die Annahme, dass bei steigendem L/d-Verhältnis der Cellulosefasern die Mischbedingungen im Extruder erschwert werden und deshalb der Exponent n_E verringert wird. Die Anpassung des Exponenten n_E erfolgt empirisch, die Berechnung unterscheidet sich je nach verwendeter Matrix und ist in Gleichung 6-27 für die PP-CF-Compounds und in Gleichung 6-28 für die PLA-CF-Compounds dargestellt.

$$n_{E(PP)} = 4,56 - 1,45 L/d + 0,12 (L/d)^2 \quad \text{Gleichung 6-27}$$

$$n_{E(PLA)} = 5,2 - 2,05 L/d + 0,22 (L/d)^2 \quad \text{Gleichung 6-28}$$

Die Einbeziehung des quadratischen L/d-Verhältnisses bewirkt eine bessere Übereinstimmung der Modellwerte mit den gemessenen E-Modul-Werten.

6.2.3.3 Anpassung des Modells von Tsai-Pagano

Aufgrund der guten Übereinstimmung der Modellwerte mit den tatsächlich gemessenen E-Modul-Werten für die PP-CF-Compounds findet für dieses Modell keine Anpassung statt. Die berechneten Werte des Tsai-Pagano-Modells für die PLA-CF-Compounds zeigen im Vergleich jedoch deutlich erhöhte E-Modul-Werte. Eine Anpassung über einen Anbindungsfaktor η_A , der die Faser-Matrix-Haftung berücksichtigen soll, führt zu folgender Gleichung 6-29:

$$E_{c*} = \left(\frac{3}{8} E_{11} + \frac{5}{8} E_{22} \right) \eta_A \quad \text{Gleichung 6-29}$$

Für die PP-CF-Compounds beträgt dieser Anbindungsfaktor nach den obigen Aus-

fürungen 1. Für die Anpassung des Tsai-Pagano-Modells an die ermittelten E-Modul-Werte für die PLA-CF-Compounds hat sich ein Wert für den Anbindungsfaktor η_A von 0,625 (5/8) als zielführend erwiesen. Die Notwendigkeit eines Anbindungsfaktors zur Berücksichtigung der Faser-Matrix-Haftung kann mit der geringeren Anbindung des PLA an die Cellulosefasern im Vergleich zum PP begründet werden (siehe Erläuterungen zu Abbildung 5-16, S. 100).

6.2.3.4 Anpassung des Modells von Halpin-Tsai

Die berechneten Werte aus dem Halpin-Tsai-Modell haben sich als deutlich zu hoch erwiesen. Der Faktor ξ ist vollständig empirisch ermittelt und dieser wird deshalb auch in dieser Arbeit an die Messwerte empirisch angepasst. Es wird davon ausgegangen, dass der Faktor ξ mit steigendem L/d-Verhältnis ansteigt, wie aus der Gleichung 6-30 und Gleichung 6-31 zu entnehmen ist.

$$\xi_{PP} = 0,768 + 0,764 L/d \quad \text{Gleichung 6-30}$$

$$\xi_{PLA} = -1,47 + 0,644 L/d \quad \text{Gleichung 6-31}$$

Bei den PP-CF-Compounds ist der Basiswert deutlich höher, als bei den PLA-CF-Compounds, der Anstieg des ξ -Faktors mit steigendem L/d-Verhältnis ist bei den PLA-CF-Compounds niedriger. Für die PLA-CF-Compounds werden für Fasern, die ein L/d-Verhältnis $< 2,3$ aufweisen, ein negativer ξ ermittelt. Dies trifft für die P350-Fasern zu (L/d-Verhältnis = 2,28; $\xi = -0,01$).

Durch die Anpassung des Modells bleiben die Werte für ξ in allen Fällen deutlich unter dem Wert von $2L/d$ der als Ausgangswert für das Modell verwendet wurde.

6.2.4 Gegenüberstellung der angepassten Modelle zur Berechnung der E-Moduln

Im Folgenden werden die angepassten Modelle mit den tatsächlich gemessenen E-Modul-Werten der PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds gegenübergestellt. In Abbildung 6-6 sind die berechneten E-Modul-Werte für die verschiedenen L/D-Verhältnisse der angepassten Modelle im Vergleich zu den tatsächlich gemessenen Werten für die PP-CF-Compounds dargestellt. Die angepassten Modelle sind mit * gekennzeichnet.

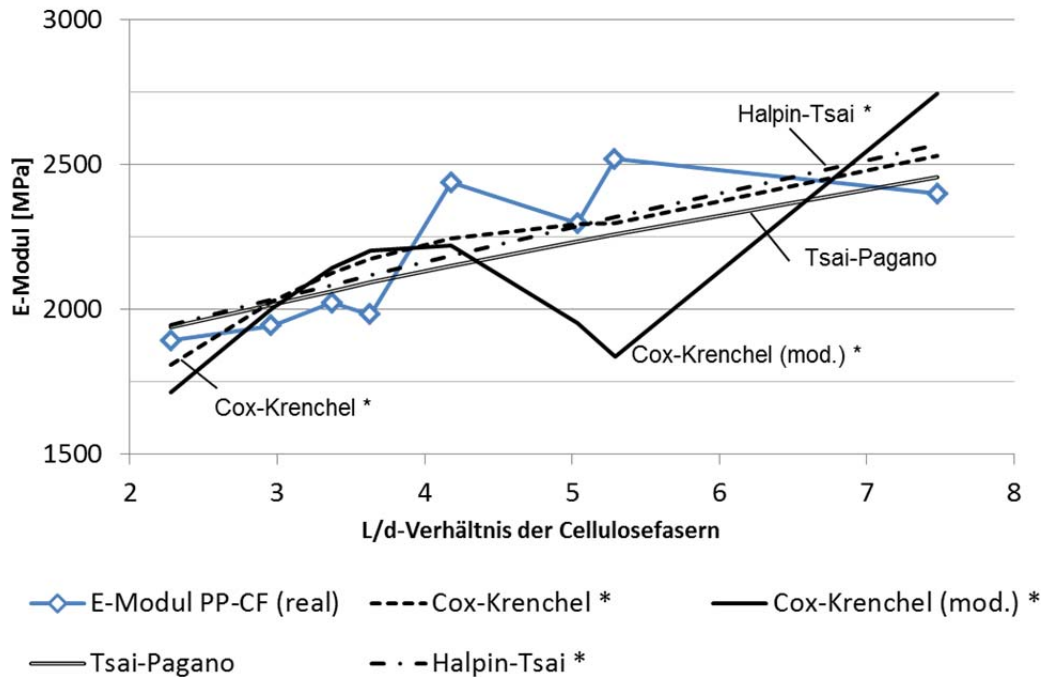


Abbildung 6-6: Vergleich der tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte der PP-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Werten der angepassten Modelle (Kennzeichnung mit *)

Das angepasste Modell von Cox-Krenchel zeigt einen linearen Verlauf, der sehr ähnlich zu dem Verlauf des angepassten Halpin-Tsai-Modells ist. Die Steigung der besagten angepassten Modelle ist etwas höher, als die des Modells von Tsai-Pagano, welches für die PP-CF-Compounds nicht angepasst wurde. Die angepasste Version des modifizierten Cox-Krenchel-Modells weist sehr starke Schwankungen auf, es ist kein linearer Verlauf in Abhängigkeit des L/d-Verhältnisses erkennbar.

In Tabelle 6-1 ist die mittlere Abweichung vom tatsächlich gemessenen E-Modul-Wert der berechneten Modellwerte aufgetragen. Der Wert in Klammern beschreibt die mittlere prozentuale Abweichung.

Tabelle 6-1: Mittlere Abweichung [MPa] der verschiedenen Modelle im Vergleich zu den ermittelten E-Modul-Kennwerten der PP-CF-Compounds

Modell	Cox-Krenchel*	Cox-Krenchel (mod.)*	Tsai-Pagano	Halpin-Tsai*
Mittlere Abweichung	125,8 MPa (5,7%)	270,9 MPa (13,3%)	116,7 MPa (5,4%)	121,4 MPa (5,5%)

Die Ergebnisse zeigen, dass die angepassten Cox-Krenchel- und Halpin-Tsai-Modelle sowie das Modell von Tsai-Pagano eine sehr gute Abbildung der Zusammenhänge zwischen L/d-Verhältnis der Cellulosefasern und tatsächlich ge-

messenen E-Modul der PP-CF-Compounds liefern. Das angepasste modifizierte Modell von Cox-Krenchel weist dagegen im Vergleich eine mehr als doppelt so hohe Abweichung auf.

In Abbildung 6-7 sind die berechneten E-Modul-Werte der angepassten Modelle im Vergleich zu den tatsächlich gemessenen Werten für die PLA-CF-Compounds in Abhängigkeit zum L/d-Verhältnis dargestellt.

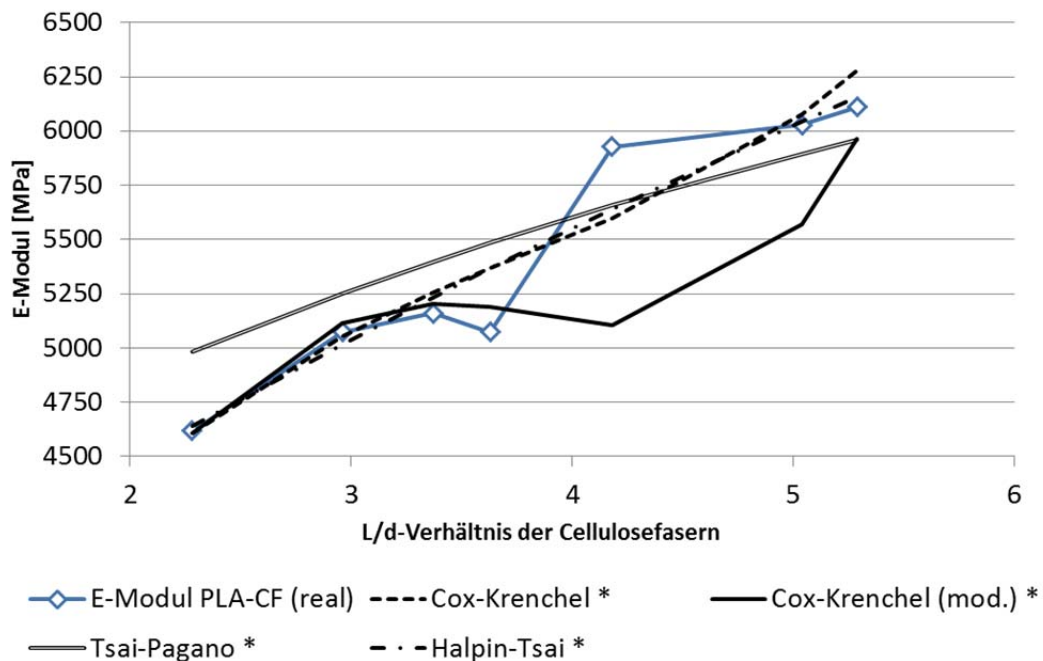


Abbildung 6-7: Vergleich der tatsächlich gemessenen E-Modul-Werte der PLA-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Werten der angepassten Modelle (Kennzeichnung mit *)

Die angepassten Modelle von Cox-Krenchel und Halpin-Tsai weisen einen beinahe identischen Verlauf auf, die berechneten Kurven liegen sehr nahe an den gemessenen E-Modul-Werten. Die Steigung der Kurve des angepassten Tsai-Pagano-Modells wird im Vergleich zum unmodifizierten Modell nicht verändert, die berechneten Werte werden durch die Anpassung zu niedrigeren E-Modul-Werten korrigiert. Die Kurve des angepassten modifizierten Modells von Cox-Krenchel weist, ebenfalls wie bei den PP-CF-Compounds, einen nicht linearen Verlauf auf. Im unteren und oberen Bereich des L/d-Verhältnisses zeigt die Kurve eine sehr gute Übereinstimmung mit den Messwerten. Im mittleren Bereich dagegen ist eine relativ hohe Abweichung festzustellen.

In Tabelle 6-2 ist die mittlere Abweichung vom tatsächlich gemessenen E-Modul-Wert der berechneten Modellwerte aufgetragen. Der Wert in Klammern beschreibt die mittlere prozentuale Abweichung.

Tabelle 6-2: Mittlere Abweichung [MPa] der verschiedenen Modelle im Vergleich zu den ermittelten E-Modul-Kennwerten der PLA-CF-Compounds

Modell	Cox-Krenchel*	Cox-Krenchel (mod.)*	Tsai-Pagano*	Halpin-Tsai*
Mittlere Abweichung	137,9 MPa (2,5%)	233,8 MPa (4,4%)	249,2 MPa (4,6%)	113,0 MPa (2,1%)

Die Ergebnisse zeigen, dass die vier angepassten Modelle sehr gut die Abhängigkeit der E-Modul-Werte vom L/d-Verhältnis der Cellulosefasern beschreiben. Die Abweichung ist deutlich geringer als bei den PP-CF-Compounds. Der Grund hierfür ist aber sehr wahrscheinlich der geringere L/d-Bereich bei der Verifizierung der Modelle für die PLA-CF-Compounds. Die FiF400-Fasern, welche das höchste L/d-Verhältnis der untersuchten Cellulosefasern aufweisen, konnten nicht in das PLA eingearbeitet werden. Aus diesem Grund liegen auch keine E-Modul-Kennwerte für dieses L/d-Verhältnis vor. Die Ergebnisse der PP-CF-Compounds lassen jedoch darauf schließen, dass es gerade im oberen Bereich des L/d-Verhältnisses verstärkt zu Agglomerationen kommt. Dadurch wird der E-Modul bei höheren L/d-Verhältnissen verringert.

6.3 Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeiten

6.3.1 Einführung verschiedener Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeit

6.3.1.1 Modell von Kelly-Tyson

Das Modell von KELLY und TYSON zur Berechnung der Zugfestigkeit von faserverstärkten Compounds mit zufällig verteilten Fasern basiert, wie auch das Cox-Krenchel-Modell, auf der Mischungsregel [46]. Die Gleichung 6-32 stellt die Berechnung der Zugfestigkeit dar [118].

$$\sigma_c = k \eta_0 \eta_{kr} V_f \sigma_f + (1 - V_f) \sigma_{um} \quad \text{Gleichung 6-32}$$

σ_{um} ist die Zugspannung der Matrix bei der maximalen Bruchdehnung der Faser. Der Faktor k ist ein Faser-Effizienz-Faktor, der berücksichtigt, inwieweit sich die Fasereigenschaften auf die Compouneigenschaften auswirken. Bei Bos wird der Faktor k für PP-Flachsfaser-Compounds zwischen 0,77 und 0,89 angegeben, bei der Verwendung von MSA-g-PP steigt der Wert auf 0,93 bis 1,03 [20]. Die Berechnung des Faktors η_0 erfolgt analog der Gleichung 6-12.

Der Faktor η_{kr} berücksichtigt die Länge der verwendeten Fasern in Bezug auf die kritische Faserlänge L_{kr} (siehe Gleichung 2-1). Die Berechnung von η_{kr} erfolgt nach Gleichung 6-33 [72].

$$\eta_{kr} = \frac{L}{2 L_{kr}} = \frac{L \tau_m}{d \sigma_f} \quad \text{Gleichung 6-33}$$

τ_m ist hierbei die Schubfestigkeit der Faser-Matrix-Grenzfläche, σ_f ist die Zugfestigkeit der Faser.

6.3.1.2 Modell von Kelly-Tyson (modifiziert)

Das modifizierte Kelly-Tyson-Modell von TAHA beinhaltet einen zusätzlichen Fasertragfaktor k_f , einen Matrixtragfaktor k_m und einen Pullout-Wahrscheinlichkeitsfaktor k_p . Die Gleichung 6-34 zeigt das modifizierte Modell von Kelly-Tyson [147].

$$\sigma_c = k_f \eta_a \eta_0 \eta_{kr} V_f (k_p \sigma_p + \sigma_f) + k_m (1 - V_f) \sigma_{um} \quad \text{Gleichung 6-34}$$

Der Fasertragfaktor k_f ist für Compounds, bei denen die Matrix-Dehnung größer ist als die Faserdehnung, $= 1 - k_p$. Ist die Dehnung der Matrix geringer, als die der Faser, so ist $k_f = (1 - k_p) r$, wobei r das Dehnungsverhältnis von Matrix zu Verstärkungsfasern ist [148]. Der Matrixtragfaktor k_m beträgt bei duktilen und spröden Matrices 1, bei elastischen Matrices ist dieser $= 1/r$ [147]. σ_p ist die Faserauszug-Spannung (engl. pullout stress) bzw. die Grenzflächenscherfestigkeit (engl. Interfacial Shear Strength, IFSS). Der Orientierungsfaktor η_0 und der Agglomerationsfaktor η_a berechnen sich analog zu der Gleichung 6-12 bzw. Gleichung 6-14.

Der Pullout-Wahrscheinlichkeitsfaktor k_p berechnet sich nach folgender Gleichung 6-35 [147].

$$k_p = 1 - \left(\frac{d_1}{d_2} \frac{d}{2R} \right)^2 \quad \text{Gleichung 6-35}$$

Hierbei ist d_1/d_2 ein Korrekturfaktor, der die ovale Geometrie des Faserquerschnitts berücksichtigen soll und aus den unterschiedlichen Faserdurchmessern in rechtwinkliger Richtung ermittelt wird ($d_1 > d_2$). Der Faktor R wird nach Gleichung 6-36 berechnet [50].

$$R = d \sqrt{\frac{\pi}{4 V_f}} \quad \text{Gleichung 6-36}$$

Der Faktor R beschreibt die Distanz zwischen den einzelnen Fasern im Compound, für den Pullout-Wahrscheinlichkeitsfaktor k_p bedeutet das, dass der Wert des Faktors mit abnehmender Distanz R zwischen den einzelnen Fasern zunimmt. Die Wahrscheinlichkeit der Berührung der einzelnen Fasern steigt und somit auch die Wahrscheinlichkeit eines Materialversagens durch Faser-Pullout bei Zugbelastung des Compounds [147].

Die Modifizierung des Modells von Kelly-Tyson nach TAHA bewirkt eine Herab-

senkung der berechneten Festigkeitswerte im Vergleich zum ursprünglichen Modell. Insbesondere bei höheren Faservolumengehalten wird durch die Berücksichtigung des Agglomerationsfaktors η_a in Verbindung mit dem Pullout-Wahrscheinlichkeitsfaktor k_p eine geringere Festigkeit berechnet, die die gemessenen Werte besser widerspiegeln [147].

6.3.1.3 Modell von Turcsányi

Das Modell von Turcsányi, welches zum Teil empirisch ermittelt wurde, wird nach folgender Gleichung 6-37 berechnet [1]:

$$\sigma_c = \frac{1-V_f}{1+A_f V_f} \sigma_m e^{(B_f V_f)} \quad \text{Gleichung 6-37}$$

Bei diesem Modell wird mit der absoluten Zugfestigkeit der Matrix σ_m (PP=23,4 MPa; PLA=71,2 MPa) gerechnet. Der Faktor A_f ist ein Parameter, der die Packungsverteilung der Fasern berücksichtigt, die Berechnung erfolgt nach Gleichung 6-38 [1].

$$A_f = \frac{p-V_f}{(1-p) V_f} \quad \text{Gleichung 6-38}$$

Hierbei ist p der maximale Faservolumenanteil (siehe Gleichung 6-15).

Der Faktor B_f berücksichtigt die Faser-Matrix-Grenzfläche und ist unterschiedlich für jedes Matrix-Faser-System. Für den Fall, dass keine Faser-Matrix-Anbindung besteht und die Fasern somit nur als Fehlstelle wirken, ist der Wert für $B_f = 0$. In diesem Fall tritt keinerlei Kraftübertragung an der Grenzfläche zwischen Faser und Matrix auf. Für Werte von $B_f < 3$ heißt das, dass die Grenzflächen-Übertragung gering ist und keine Verstärkungswirkung der Fasern eintritt [1]. CABRAL et al. haben für ihre Berechnungen einen Wert für B_f von 3,77 angenommen, allerdings wird in den Untersuchungen ein PP-Jutefaser-System ohne den Einsatz von Haftvermittlern betrachtet [23].

Bei dem Modell von Turcsányi ist zu beachten, dass die Einflüsse der Faserlängen und -durchmesser nicht berücksichtigt werden.

6.3.2 Gegenüberstellung der Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeiten

Die verschiedenen, in Kapitel 6.3.1 vorgestellten Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeiten der PP- und PLA- Cellulosefaser-Compounds werden in diesem Abschnitt mit den tatsächlich ermittelten Zugfestigkeitswerten gegenübergestellt.

Zur Ermittlung der Zugfestigkeitswerte werden folgende Werte verwendet: Die Zugfestigkeit der Cellulosefasern wird mit 900 MPa angenommen [160], die Bruchdehnung beträgt 2,1% [136]. Die Zugfestigkeit der Matrices bei der Bruch-

dehnung der Cellulosefasern betragen 17 MPa (PP) bzw. 45 MPa (PLA)¹³. Die Grenzflächen-Scherfestigkeiten zwischen Matrix und Faser sollen 12 MPa (PP-Cellulosefaser) [20] bzw. 7 MPa (PLA-Cellulosefaser) [107] betragen. Der Faser-Effizienz-Faktor k aus dem Modell von Kelly-Tyson beträgt 1. Der Faktor B_f im Modell von TURCSÁNYI beträgt 3,77 für ein PP-Jutefaser-System ohne Verwendung eines Haftvermittlers [23]. Für die mit MSA-g-PP additvierten PP-Cellulosefaser-Compounds wird der B_f -Wert mit dem Faktor 1,2 multipliziert. Eigene Versuche haben gezeigt, dass durch die Verwendung von MSA-g-PP eine Steigerung der Zugfestigkeit von 20% bei einem Faseranteil von 20 wt.-% möglich ist. Der B_f -Wert für die PP-Cellulosefaser-Compounds wird deshalb mit 4,524 angenommen. Für die PLA-Cellulosefaser-Compounds wird mit einem B_f -Wert von 2,97 gerechnet. Die Zugfestigkeitswerte von vergleichbaren PLA-Cellulosefaser-Compounds haben in vorherigen Untersuchungen eine Verringerung um den Faktor 0,788 im Vergleich zum reinen PLA gezeigt. Für die Berechnung der Zugfestigkeiten werden die mittleren Aspect-Ratio-Werte aus Tabelle 4-9 verwendet.

In der Abbildung 6-8 sind die tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der hergestellten PP-Cellulosefaser-Compounds im Vergleich mit den berechneten Werten dargestellt.

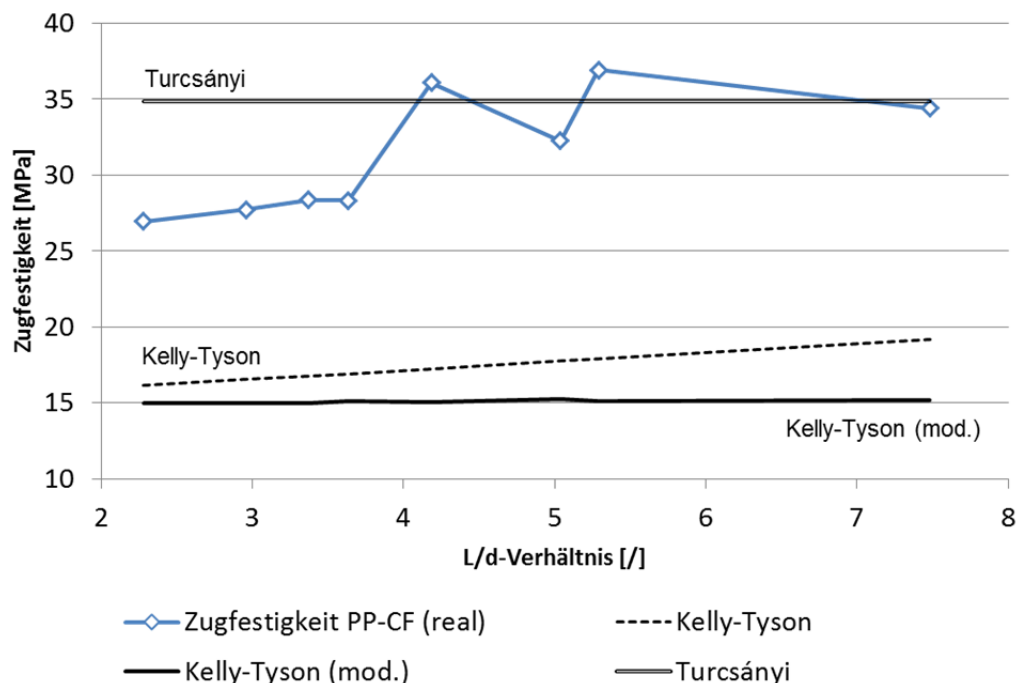


Abbildung 6-8: Vergleich der tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der PP-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Modellwerten

Die Anwendung des Modells von TURCSÁNYI führt zu einem konstanten Verlauf der berechneten Zugfestigkeitswerte in Abhängigkeit des L/d-Verhältnisses der Cellulosefasern. Die Nichteinbeziehung der Faserlänge bzw. -dicke ist der Grund

¹³ Die Werte wurden aus Zugprüfungsprotokollen von eigenen Messungen entnommen.

hierfür. Die Abschätzung des B_f -Wertes aufgrund der MSA-g-PP additivierten Compounds ist zumindest für das Compound im höheren Bereich des L/d-Verhältnisses der Cellulosefasern ($L/d > 4$) passend. Das Modell von Kelly-Tyson verursacht bei der Anwendung Kennwerte, die um ca. 10 MPa zu gering sind. Weiterhin ist die Steigung der ermittelten Kennlinie zu niedrig. Die tatsächlich gemessenen Werte werden nicht zufriedenstellend abgebildet. Bei dem von TAHA modifizierten Modell nach Kelly-Tyson sind die berechneten Kennwerte ebenfalls zu gering. Die Einbeziehung des Agglomerationsfaktors, des Pullout-Wahrscheinlichkeitsfaktors und des Fasertragfaktors führt dazu, dass die erhaltene Kennlinie keine Steigung der Zugfestigkeiten bei steigendem L/d-Verhältnis der Cellulosefasern aufweist.

In Abbildung 6-9 sind die tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der hergestellten PLA-Cellulosefaser-Compounds und die berechneten Werte vergleichend gegenübergestellt.

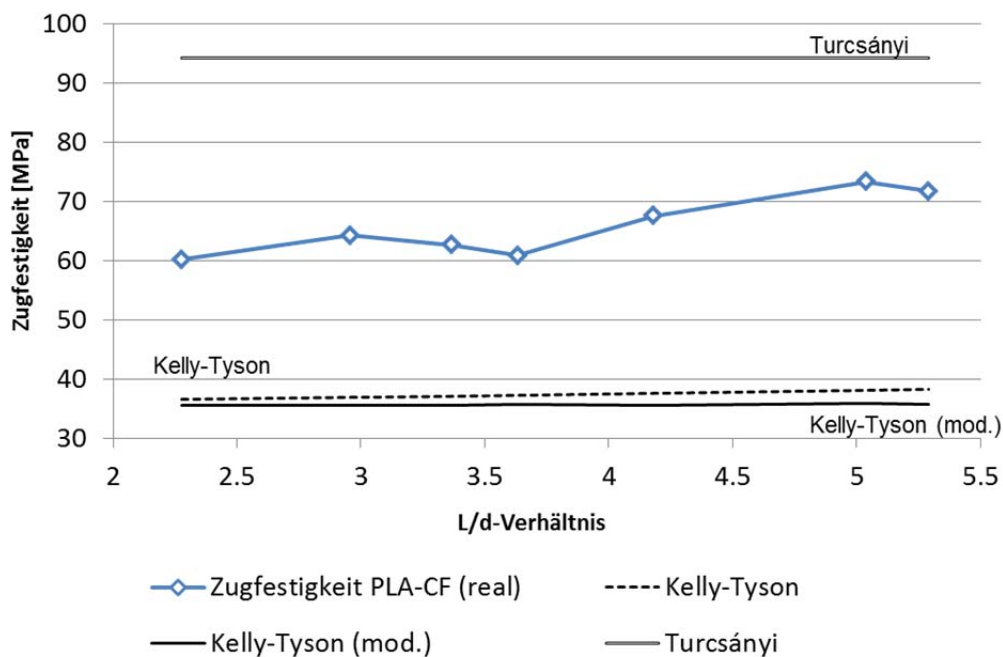


Abbildung 6-9: Vergleich der tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der PLA-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Modellwerten

Die Zugfestigkeitswerte, die nach dem Modell von TURCSÁNYI berechnet wurden, zeigen einen konstanten Verlauf bei zunehmendem L/d-Verhältnis, da die Faserlänge und –dicke im Modell nicht berücksichtigt werden. Obgleich für den B -Wert für die PLA-CF-Compounds ein geringerer Wert angenommen wurde, als bei den PP-CF-Compounds, werden deutlich zu hohe Zugfestigkeitswerte ermittelt. Die Faser-Matrix-Haftung bei den PLA-CF-Compounds scheint erheblich geringer zu sein. Die Anwendung der Modelle von Kelly-Tyson, unmodifiziert und modifiziert nach TAHA, führt zu deutlich zu gering berechneten Zugfestigkeitswerten im Vergleich zu den tatsächlich ermittelten Werten. Bei dem Modell von Kel-

ly-Tyson ist eine geringe Steigung der Zugfestigkeit über das zunehmende L/d-Verhältnis erkennbar. Bei der Modifikation von TAHA ist wie auch bei den PP-CF-Compounds keine Steigung der Zugfestigkeit bei ansteigendem Aspect Ratio der Fasern erkennbar.

Keines der angewendeten Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeit der Cellulosefaser-Compounds kann die tatsächlich gemessenen Werte zufriedenstellend widerspiegeln. Aus diesem Grunde werden die verwendeten Modelle zur besseren Abbildung der Wirklichkeit angepasst.

6.3.3 Anpassung der Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeiten

6.3.3.1 Anpassung des Modells von Kelly-Tyson

Die berechneten Zugfestigkeiten nach dem Modell von Kelly-Tyson sind im Vergleich zu den gemessenen Werten viel zu gering. Aus diesem Grund wird das Modell angepasst. Als Grundlage der Anpassung dient der Faktor k aus Gleichung 6-32. Dieser wird empirisch mit Hilfe des L/d-Verhältnisses an die gemessenen Zugfestigkeitswerte angepasst und in der angepassten Variante als k_{KT} bezeichnet. Die Beziehungen für die PP-CF-Compounds bzw. die PLA-CF-Compounds sind in Gleichung 6-39 und Gleichung 6-40 dargestellt.

$$k_{KT(PP)} = 9,46 - 0,7 L/d \quad \text{Gleichung 6-39}$$

$$k_{KT(PLA)} = 8,47 - 0,77 L/d \quad \text{Gleichung 6-40}$$

Sowohl für die Berechnung des Faktors k_{KT} für die PP- als auch für die PLA-Compounds ergibt sich eine deutliche Anhebung der Zugfestigkeit. Mit zunehmendem L/d-Verhältnis der Cellulosefasern wird diese Anhebung jedoch reduziert. Bei einem L/d-Verhältnis von 13,5 hätte der Faktor k_{KT} bei den PP-CF-Compounds z.B. einen negativen Wert, dies hätte ebenfalls einen negativen Zugfestigkeitswert zur Folge. Das angepasste Modell kann demnach nur für ein relativ geringes L/d-Verhältnis der Fasern gültig sein.

Aus der Anwendung des Faktors k_{KT} ergibt sich nun die angepasste Gleichung 6-41 für die Berechnung der Zugfestigkeit.

$$\sigma_{c*} = k_{KT} \eta_0 \eta_{kr} V_f \sigma_f + (1 - V_f) \sigma_{um} \quad \text{Gleichung 6-41}$$

Der Faktor k_{KT} korrigiert den offensichtlich zu niedrig angenommenen Faserlängen-Effizienzfaktor η_{kr} , der das Verhältnis von Länge zu Durchmesser der Fasern beinhaltet.

6.3.3.2 Anpassung des erweiterten Modells von Kelly-Tyson

Die Anpassung des erweiterten Modells von Kelly-Tyson erfolgt ebenfalls über einen zusätzlichen Korrekturfaktor $k_{mod.}$. Dieser soll die berechneten Zugfestigkeitswerte nach oben anpassen. Die Berechnung des Faktors $k_{mod.}$ ist in Gleichung 6-42 für die PP-CF-Compounds und in Gleichung 6-43 für die PLA-CF-Compounds beschrieben.

$$k_{mod.(PP)} = 106 - 261 \left(\frac{1}{0,01 L_{kr}} \right) \quad \text{Gleichung 6-42}$$

$$k_{mod.(PLA)} = 132 - 493 \left(\frac{1}{0,01 L_{kr}} \right) \quad \text{Gleichung 6-43}$$

Der Faktor $k_{mod.}$ berücksichtigt den Kehrwert der kritischen Faserlänge L_{kr} . Die kritische Faserlänge wird in den Annahmen offensichtlich als zu hoch veranschlagt, wodurch der resultierende Zugfestigkeitswert deutlich zu niedrig berechnet wird. Im erweiterten Kelly-Tyson-Modell wird der Faktor k_p verwendet, der zusätzlich den Faserdurchmesser in die Berechnung einbezieht. Dadurch ist eine Beschränkung auf das L/d-Verhältnis (wie beim Kelly-Tyson-Modell) bei der Anpassung des erweiterten Kelly-Tyson-Modells nicht zielführend. Die Anpassung über die kritische Faserlänge ist deutlich besser, da bei der Berechnung (siehe Gleichung 2-1) ebenfalls die Dicke der Fasern eingeht.

In Gleichung 6-44 ist das angepasste Modell zur Berechnung der Zugfestigkeit nach dem erweiterten Modell von Kelly-Tyson dargestellt.

$$\sigma_{c*} = k_{mod.} k_f \eta_a \eta_0 \eta_{kr} V_f (k_p \sigma_p + \sigma_f) + k_m (1 - V_f) \sigma_{um} \quad \text{Gleichung 6-44}$$

Die Werte für den Agglomerationsfaktor n werden, anders als bei der Anpassung der Modelle für die E-Modul-Berechnung, nicht mit Hilfe einer Regressionsgeraden korrigiert. Der Wert wird für die PP- und PLA-CF-Compounds auf 1,5 festgelegt.

6.3.3.3 Anpassung des Modells von Turcsányi

Das Modell von Turcsányi wird durch den Faktor k_{Tu} an die gemessenen Zugfestigkeitswerte angepasst. Hierbei ist vor allem die Einbeziehung des L/d-Verhältnisses wichtig, da beim ursprünglichen Modell die Länge und Durchmesser der Fasern nicht berücksichtigt werden. Weiterhin sollen die berechneten Werte nach unten korrigiert werden, um die geringere Faser-Matrix-Haftung zu berücksichtigen. In Gleichung 6-45 und Gleichung 6-46 ist die Berechnung des Faktors k_{Tu} für die PP- und die PLA-CF-Compounds beschrieben.

$$k_{Tu(PP)} = 0,392 + 0,097 L/d \quad \text{Gleichung 6-45}$$

$$k_{Tu(PLA)} = 0,0511 + 0,1 L/d \quad \text{Gleichung 6-46}$$

Der Faktor bewirkt eine Anpassung der Zugfestigkeitswerte nach unten. Gleichzeitig wird die zunehmende Zugfestigkeit bei steigendem L/d-Verhältnis einbezogen. Dies unterscheidet das angepasste Modell von Turcsányi deutlich von dem angepassten Modell von Kelly-Tyson. In Gleichung 6-47 ist die Berechnung des erweiterten Modells von Turcsányi beschrieben.

$$\sigma_{c*} = \frac{1-V_f}{1+A V_f} \sigma_{um} e^{(k_{Tu} B V_f)} \quad \text{Gleichung 6-47}$$

Das Einsetzen des Faktors k_{Tu} erfolgt im Exponenten der Eulerschen Zahl e .

6.3.4 Gegenüberstellung der angepassten Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeiten

Im Folgenden werden die angepassten Modelle mit den tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerten der PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds gegenübergestellt. In Abbildung 6-10 sind die berechneten Zugfestigkeitswerte für die verschiedenen L/d-Verhältnisse der angepassten Modelle im Vergleich zu den tatsächlich gemessenen Werten der PP-CF-Compounds dargestellt. Die angepassten Modelle sind mit * gekennzeichnet.

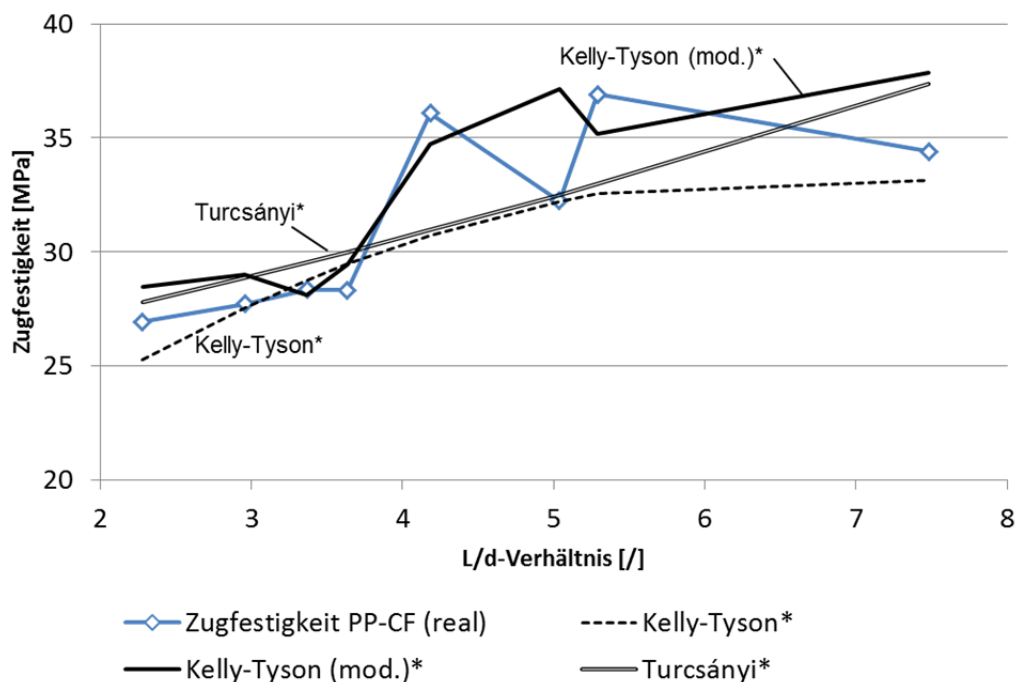


Abbildung 6-10: Vergleich der tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der PP-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Werten der angepassten Modelle (Kennzeichnung mit *)

Das angepasste Modell von Turcsányi bewirkt einen geradlinigen Verlauf der Zugfestigkeit in Abhängigkeit des L/d-Verhältnisses. Der Verlauf der Kurve für die Zugfestigkeitswerte nach dem angepassten Modell von Kelly-Tyson weist eine Steigung im geringen L/d-Verhältnis der Cellulosefasern auf. Im weiteren Verlauf fällt die Steigung ab, so dass ein Plateau erreicht wird. Die Zugfestigkeitswerte,

die nach dem angepassten erweiterten Modell von Kelly-Tyson berechnet werden, weisen keinen geradlinigen Verlauf in Relation zum L/d-Verhältnis der Fasern auf. Es kann aber auch hier eine ansteigende Tendenz der Zugfestigkeit bei zunehmendem Faserlängen-zu-Durchmesser-Verhältnis ausgemacht werden.

In Tabelle 6-3 ist die mittlere Abweichung der berechneten Zugfestigkeitswerte von den experimentell ermittelten Werten für die jeweiligen angepassten Modelle dargestellt. Der Wert in Klammern beschreibt die mittlere prozentuale Abweichung.

Tabelle 6-3: Mittlere Abweichung [MPa] der verschiedenen Modelle im Vergleich zu den ermittelten Zugfestigkeits-Kennwerten der PP-CF-Compounds

Modell	Kelly-Tyson*	Kelly-Tyson (mod.)*	Turcsányi*
Mittl. Abweichung	1,8 MPa (5,9%)	2,7 MPa (7,9%)	1,7 MPa (5,5%)

Die Ergebnisse zeigen, dass das angepasste Modell von Turcsányi die tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte am besten widerspiegelt, die mittlere prozentuale Abweichung hat hier den geringsten Wert und liegt bei 5,5%.

In Abbildung 6-11 sind die verschiedenen Zugfestigkeitswerte aus der Berechnung mittels der angepassten Modelle im Vergleich mit den gemessenen Werten der PLA-CF-Compounds dargestellt. Die Darstellung erfolgt über das mittlere L/d-Verhältnis der Cellulosefasern.

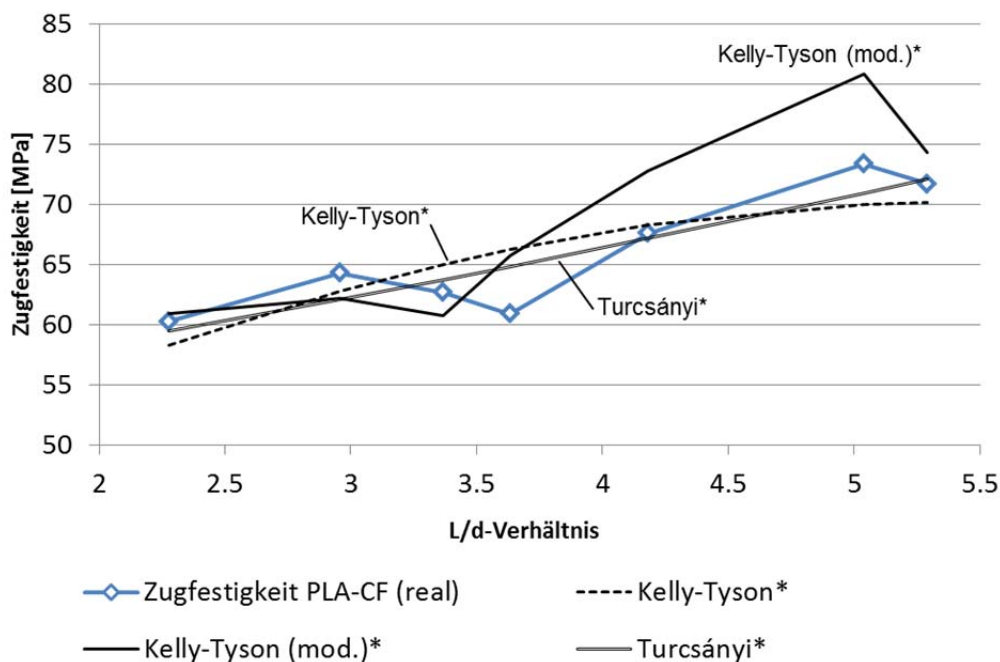


Abbildung 6-11: Vergleich der tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der PLA-Cellulosefaser-Compounds mit den berechneten Werten der angepassten Modelle (Kennzeichnung mit *)

Der Verlauf der berechneten Werte nach dem angepassten Turcsányi-Modell in Abhängigkeit des L/d-Verhältnisses ist linear. Mit steigendem L/d-Verhältnis steigt auch die Zugfestigkeit der PLA-CF-Compounds an. Die Berechnung nach dem angepassten Modell von Kelly-Tyson bewirkt einen linearen Anstieg der Zugfestigkeit bei geringen L/d-Verhältnissen, bei höheren L/d-Verhältnissen flacht die Steigung der Kurve ab. Die Kurve der berechneten Zugfestigkeitswerte nach dem angepassten erweiterten Modell von Kelly-Tyson zeigt keinen geradlinigen Verlauf, jedoch ist auch bei diesem Modell eine tendenzielle Zunahme der Zugfestigkeit bei steigendem L/d-Verhältnis der Faser erkennbar.

Die Tabelle 6-4 zeigt die mittlere Abweichung der berechneten Modellwerte von den experimentell ermittelten Zugfestigkeitswerten. Die Werte in Klammern beschreiben die mittlere prozentuale Abweichung.

Tabelle 6-4: Mittlere Abweichung [MPa] der verschiedenen Modelle im Vergleich zu den ermittelten Zugfestigkeits-Kennwerten der PLA-CF-Compounds

Modell	Kelly-Tyson*	Kelly-Tyson (mod.)*	Turcsányi*
Mittl. Abweichung	2,4 MPa (3,6%)	3,6 MPa (5,0%)	1,6 MPa (2,5%)

Aus den Ergebnissen kann abgeleitet werden, dass die berechneten Werte nach dem angepassten Modell von Turcsányi die tatsächlich gemessenen Zugfestigkeitswerte der PLA-CF-Compounds am besten widerspiegelt. Die mittlere Abweichung beträgt lediglich 2,5%.

6.4 Anwendung der angepassten Modelle auf andere Compounds

In diesem Abschnitt werden die angepassten Modelle zur Berechnung der relativen Viskosität, des E-Moduls und der Zugfestigkeit mit ermittelten Messwerten anderer hergestellter Compounds verglichen. Dadurch soll die Übertragbarkeit und Eignung der angepassten Modelle auf andere Compounds überprüft werden. Die ermittelten Kennwerte stammen aus anderen Versuchsreihen und wurden unabhängig von den oben beschriebenen Modellanpassungen generiert. Dabei wurden zur Herstellung der Compounds andere Materialchargen bzw. teilweise auch andere Matrices verwendet.

Zum Vergleich werden sowohl unterschiedliche Cellulosefasern als auch Holz- und Viskosefasern sowie verschiedene Hanfstaub-Fraktionen herangezogen. Weiterhin werden auch abweichende Fasergehalte mit den Berechnungen der angepassten Modelle verglichen. Somit kann einerseits die Vergleichbarkeit innerhalb der untersuchten Modellgrenzen betrachtet werden. Andererseits kann aber auch aufgezeigt werden, inwieweit die angepassten Modelle noch zuverlässige Werte generieren, wenn die Grenzen der Modelle in puncto Fasergehalt,

L/d-Verhältnis des Füllstoffes oder Matrixtyp verlassen werden. Die Grenzen der Modelle sind maximal 20 wt.-% Faseranteil (PP-Compounds) bzw. 25 wt.-% Faseranteil (PLA-Compounds), L/d-Verhältnis der Fasern maximal 7,5 (PP-Compounds) bzw. 5,3 (PLA-Compounds).

Es werden folgende Compounds für den Vergleich mit den angepassten Modellen der PP-Cellulosefaser-Compounds verwendet (siehe Tabelle 6-5). Die farbige Markierung in der Tabelle kennzeichnet eine Überschreitung der Modellgrenzen durch Verwendung eines anderen PP, eines höheren Faseranteils oder eines höheren L/d-Verhältnisses der Fasern.

Tabelle 6-5: Zusammensetzung der Compounds für den Modell-Vergleich (PP-Matrix)

Verwendete Faser-materialien	L/d-Verhältnis	$Q_{rel.}$	Faseranteil [wt.-%]	Verwendete Matrix
Cellulosefaser HM30	2,52	3,62	20,0	BH345MO
Cellulosefaser B800	8,02	2,05	30,0	Moplen EP500V, Moplen EP3307
Holzfaser C120	2,59	3,00	20,0	BH345MO
Holzfaser BK40/90	3,93	3,75	20,0	BH345MO
Holzfaser 1250DH	8,57	1,63	20,0	BH345MO
HM30/Viskosefaser 1 (50:50)	4,13	5,58	20,0	BH345MO
Viskosefaser 2	266,0	k.A.	20,0	Moplen 502N

Für die Berechnung der Holzfasern (HF) werden die gleichen E-Modul- und Festigkeitswerte angenommen, wie für die Cellulosefasern. Für den E-Modul und die Zugfestigkeit der Viskosefasern (VF) werden 23 GPa bzw. 545 MPa als Berechnungswerte angenommen [10]. Die mechanischen und rheologischen Kennwerte der verschiedenen PP-Matrices können der Tabelle 6-6 entnommen werden.

Tabelle 6-6: Mechanische und rheologische Eigenschaften der verwendeten PP-Matrices

Matrix-PP	E-Modul [MPa]	Zugfestigkeit [MPa]	Zugfestigkeit bei Bruchdehnung der Faser [MPa]
EP500V	1300	24,7	17,8
EP3307	1290	20,8	20,8
502N	1550	35,0	35,0

Für den Vergleich mit den angepassten Modellen der PLA-Cellulosefaser-Compounds werden die aufgeführten Compounds aus Tabelle 6-7 verwendet. Die farbige Markierung in der Tabelle kennzeichnet eine Überschreitung der Modellgrenzen durch Verwendung eines anderen Matrix-Polymers, eines höheren Faseranteils oder eines höheren L/d-Verhältnisses der Fasern.

Tabelle 6-7: Zusammensetzung der Compounds für den Modell-Vergleich (PLA-Matrix)

Verwendete Fasermaterialien	L/d-Verhältnis	$Q_{rel.}$	Faseranteil [wt.-%]	Verwendete Matrix
Cellulosefaser G40	2,48	2,18	25,0	PLA 3251D
Cellulosefaser HM30	2,52	3,62	25,0	PLA 3251D
Cellulosefaser B800	8,02	2,05	20,0	PLA 3251D
Hanfstaub F4	3,38	3,15	25,0	PLA 3251D
Hanfstaub F5	2,74	3,85	25,0/40,0	PLA 3251D
Viskosefaser 2	266,0	k.A.	25,0	PLA 2003D

Der E-Modul der Hanfpartikel wird mit 65 GPa und die Zugfestigkeit mit 800 MPa angenommen, die Bruchdehnung beträgt 3,0% [99]. Der E-Modul und die Zugfestigkeit des PLA 2003D betragen 3370 MPa bzw. 69,1 MPa¹⁴.

¹⁴ Kennwerte wurden durch eigene Messungen nach DIN EN ISO 527-2 ermittelt.

6.4.1 Anwendung des angepassten Modells für die Berechnung der relativen Viskositäten

Die Übertragbarkeit des angepassten Modells nach Brodnyan soll in diesem Abschnitt überprüft werden. Dazu werden die gemessenen MVR-Werte und die daraus ermittelten relativen Viskositäten mit den berechneten Werten nach dem Modell von Brodnyan gegenübergestellt.

Folgende Compounds werden für die PP-Matrix verglichen: HF C120, HF BK40/90, HF 1250DH, CF HM30 und CF HM30/VF 1 (50:50). Die Füllstoffanteile betragen jeweils 20 wt.-% und die PP-Matrix ist in allen Fällen BH345MO. In Abbildung 6-12 sind die mittels MVR-Messung ermittelten relativen Viskositäten der PP-Compounds im Vergleich zu den berechneten Werten nach dem angepassten Modell von Brodnyan in Abhängigkeit der Aspect Ratio-Verteilung ($Q_{rel.}$) dargestellt.

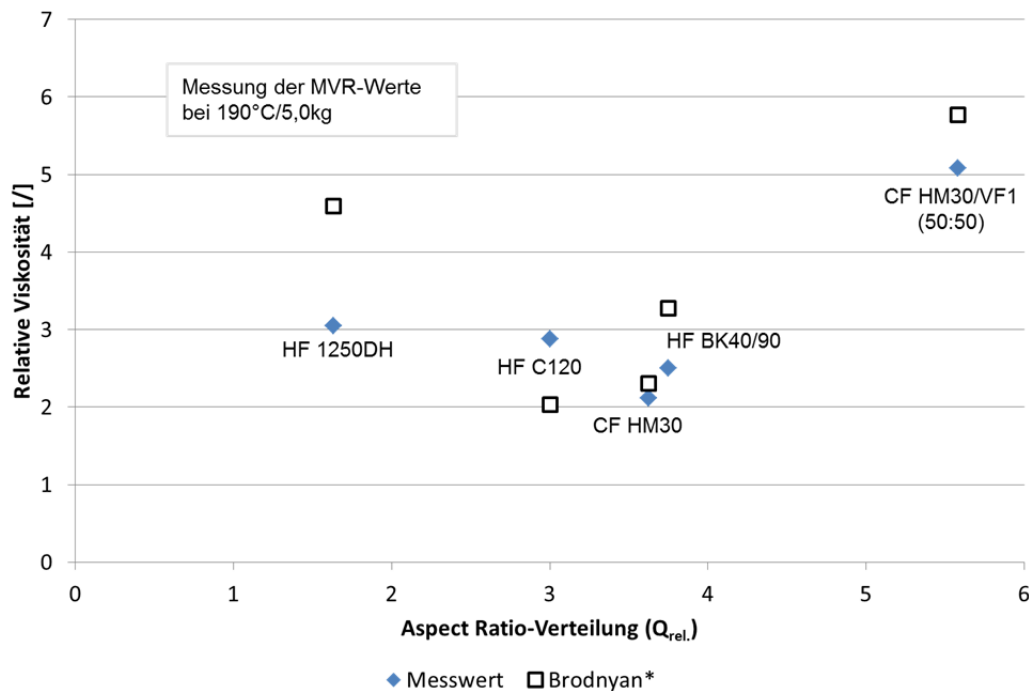


Abbildung 6-12: Vergleich der gemessenen relativen Viskositäten der PP-Faser-Compounds mit den berechneten Werten nach dem angepassten Brodnyan-Modell

Aus der Abbildung ist zu erkennen, dass die Unterschiede zwischen den ermittelten relativen Viskositäten und den nach dem angepassten Modell von Brodnyan berechneten Werten relativ gering sind. Bei dem PP-Compound mit den HF 1250DH ist die Differenz zwischen Messwert und Rechenwert am höchsten. Die mittlere prozentuale Abweichung zwischen Messwert und Modellwert beträgt 26,6%.

Für die PLA-Compounds werden folgende Fasern in Kombination mit dem PLA 3251D verglichen: Hanfstaub F4, Hanfstaub F5, CF G40, CF HM30, CF B800. Bei dem PLA-Compound mit den CF B800 wird ein Gewichtsanteil von 20 wt.-% ver-

wendet, ansonsten beträgt der Gewichtsanteil 25 wt.-%. Die Abbildung 6-13 zeigt die Ergebnisse des Vergleichs für die PLA-Compounds.

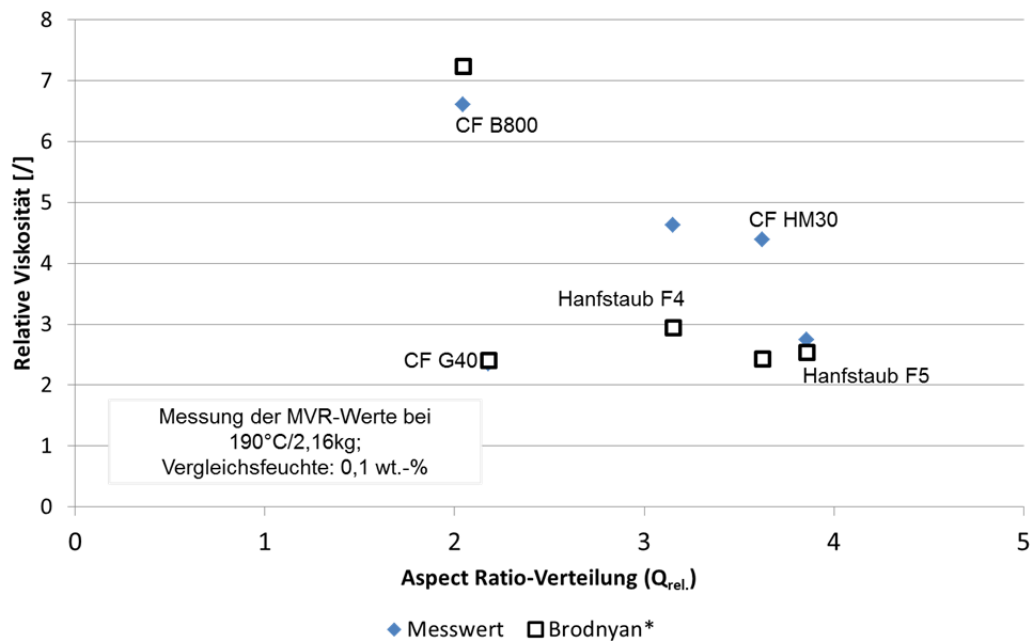


Abbildung 6-13: Vergleich der gemessenen relativen Viskositäten der PLA-Faser-Compounds mit den berechneten Werten nach dem angepassten Brodnyan-Modell

Der Vergleich zwischen den Werten für die relative Viskosität, die mittels MVR-Messung ermittelt wurden und denen, die nach dem angepassten Modell von Brodnyan berechnet wurden, zeigen relativ geringe Differenzen. Der größte Unterschied zwischen berechnetem und gemessenem Wert besteht bei dem PLA-Cellulosefaser-Compound HM30. In Anbetracht der Tatsache, dass die Bestimmung der MVR-Werte bei der PLA-Matrix aufgrund der Feuchtigkeitsabhängigkeit der Viskosität deutlich anfälliger für Messfehler ist, ist die geringe Abweichung der Modellwerte zu den gemessenen Werten der relativen Viskosität sehr positiv zu bewerten. Die mittlere prozentuale Abweichung des Modells von den Messwerten beträgt 20,1% und liegt damit geringer als bei dem Modell für die PP-CF-Compounds.

6.4.2 Anwendung der angepassten Modelle für die Berechnung der E-Moduln

Für den Vergleich der angepassten Modelle mit anderen PP- und PLA-Faser-Compounds werden die gemessenen E-Modul-Werte mit den nach den angepassten Modellen (siehe Kapitel 6.2.3) berechneten Werten gegenübergestellt.

In Abbildung 6-14 sind die berechneten E-Modul-Werte nach den angepassten Modellen für die PP-Faser-Compounds mit den gemessenen Werten dargestellt. Links der gestrichelten Linie sind im Diagramm die Faser-Compounds dargestellt, bei denen die Modellgrenzen eingehalten werden, rechts davon werden die Mo-

dellgrenzen durch erhöhte L/d-Verhältnisse der Fasern bzw. andere PP-Matrices oder einen erhöhten Faseranteil überschritten.

Die Ergebnisse zeigen, dass innerhalb der Modellgrenzen der berechnete E-Modul-Wert anhand der verschiedenen angepassten Modelle eine relativ gute Übereinstimmung mit dem Messwert ergibt. Die gemessenen E-Modul-Werte für die Holzfaser-Compounds (HF C120 und HF BK40/90) sind tendenziell höher als die berechneten Werte, die Unterschiede liegen aber in einem akzeptablen Bereich.

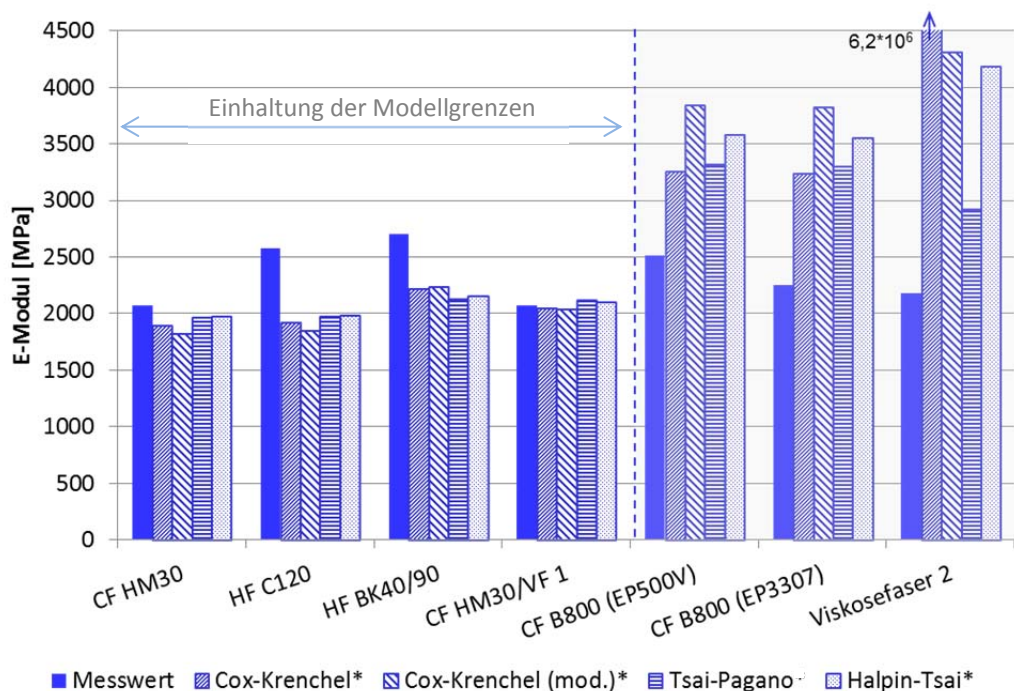


Abbildung 6-14: Vergleich der berechneten und gemessenen E-Modul-Werte für die PP-Faser-Compounds (gestrichelte Linie markiert die Compounds außerhalb der Modellgrenzen)

Im rechten Bereich der Abbildung, in der die Werte außerhalb der Modellgrenzen aufgezeichnet sind, sind deutlich höhere Abweichungen feststellbar. Bei den Cellulosefaser-Compounds CF B800 mit dem erhöhten Faseranteil und den unterschiedlichen PP-Matrices weist das angepasste erweiterte Modell nach Cox-Krenchel die höchsten Abweichungen auf. Bei dem Viskosefaser-Compound mit dem sehr hohen L/d-Verhältnis der Fasern zeigt sich, dass insbesondere das angepasste Cox-Krenchel-Modell für diesen Bereich des L/d-Verhältnisses nicht geeignet ist. Es werden viel zu hohe E-Modul-Werte berechnet. Am besten geeignet im hohen Bereich der Faser-L/d-Verhältnisse ist das Modell nach Tsai-Pagano, welches zudem nicht angepasst wurde.

In Abbildung 6-15 sind die gemessenen und, anhand der verschiedenen angepassten Modelle, berechneten E-Modul-Werte für die PLA-Faser-Compounds dargestellt.

Die berechneten Werte innerhalb der Modellgrenzen (linke Seite des Diagramms) stimmen sehr gut mit den gemessenen E-Modul-Werten der PLA-Compounds überein. Bei der Überschreitung der Modellgrenze (rechte Seite des Diagramms) zeigt sich, dass die berechneten Werte basierend auf den angepassten bzw. angepassten und erweiterten Modellen nach Cox-Krenchel sehr stark von den Messwerten abweichen. Insbesondere eine Überschreitung der Modellgrenze beim L/d-Verhältnis der Fasern bewirkt eine extreme Erhöhung der Rechenwerte.

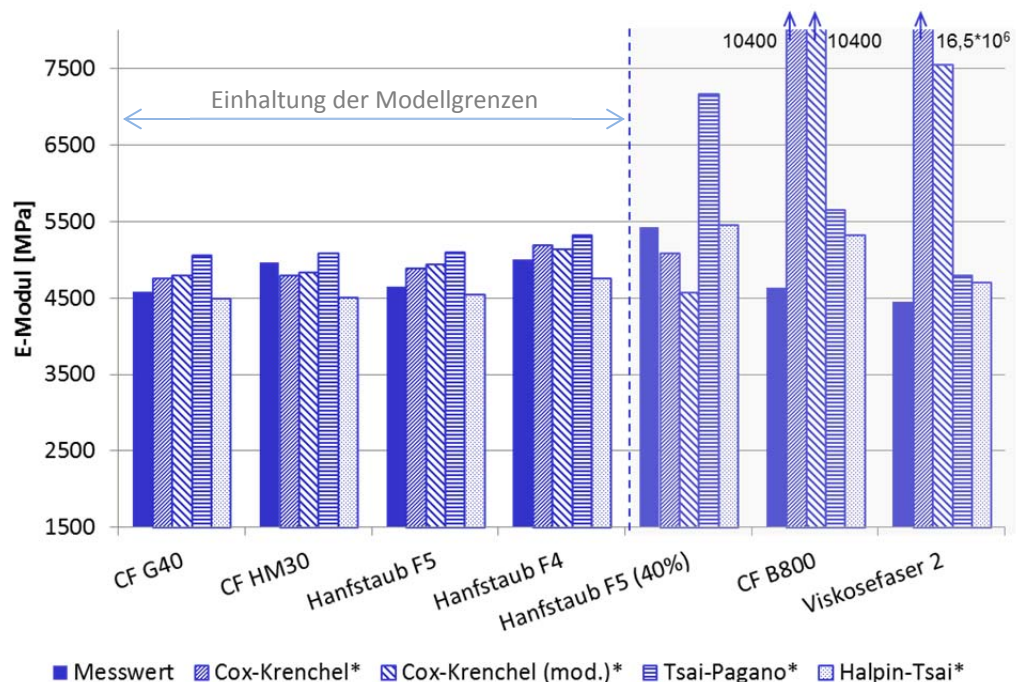


Abbildung 6-15: Vergleich der berechneten und gemessenen E-Modul-Werte für die PLA-Faser-Compounds (gestrichelte Linie markiert die Compounds außerhalb der Modellgrenzen)

Die berechneten Werte nach den angepassten Modellen nach Tsai-Pagano und Halpin-Tsai weisen relativ gute Übereinstimmungen im Vergleich zu den Messwerten, auch außerhalb der Modellgrenzen, auf.

Die Tabelle 6-8 zeigt die mittlere prozentuale Abweichung vom Messwert der berechneten E-Modul-Werte für die PP- und PLA-Compounds. Dabei wird zwischen der Abweichung inner- und außerhalb der Modellgrenzen unterschieden.

Tabelle 6-8: Mittlere Abweichung der berechneten E-Modul-Werte für die PP- und PLA-Compounds innerhalb und außerhalb der Grenzen der jeweiligen Modelle

Mittlere Abweichung vom Messwert <u>innerhalb</u> der Modellgrenze [%]				
	Cox-Krenchel*	Cox-Krenchel (erw.)*	Tsai-Pagano* ¹⁵	Halpin-Tsai*
PP-Compounds	13,3	14,8	13,0	12,2
PLA-Compounds	4,1	4,2	7,2	4,6
Mittlere Abweichung vom Messwert <u>außerhalb</u> der Modellgrenze [%]				
	Cox-Krenchel*	Cox-Krenchel (erw.)*	Tsai-Pagano* ¹⁵	Halpin-Tsai*
PP-Compounds	>100	73,6	37,6	64,2
PLA-Compounds	>100	69,8	13,0	5,7

Für die mittlere prozentuale Abweichung innerhalb der Modellgrenzen zeigt sich somit, dass bei der Gesamtbetrachtung für beide Matrixsysteme (PP und PLA) das angepasste Modell nach Halpin-Tsai am besten zur Vorhersage der E-Modul-Werte der Compounds geeignet ist. Wird allerdings der Untersuchungsbereich auf Compounds außerhalb der Modellgrenzen erweitert, so liefert das angepasste bzw. nicht angepasste Modell nach Tsai-Pagano deutlich zutreffendere Ergebnisse. Die angepassten und erweiterten Modelle nach Cox-Krenchel sind für eine Abschätzung der E-Modul-Werte außerhalb der Modellgrenzen nicht geeignet.

Das nicht angepasste (für PP-Matrices) bzw. angepasste (für PLA-Matrices) Modell nach Tsai-Pagano kann demnach zur Abschätzung der E-Modul-Werte von Faser-Compounds verwendet werden.

6.4.3 Anwendung der angepassten Modelle für die Berechnung der Zugfestigkeiten

Für die Verifizierung der angepassten Modelle (siehe Kapitel 6.3.3) zur Berechnung der Zugfestigkeit werden die gemessenen Zugfestigkeitswerte verschiedener PP- und PLA-Faser-Compounds mit den Modellwerten gegenübergestellt.

In der Abbildung 6-16 sind die berechneten Werte für verschiedene PP-Faser-Compounds mit den tatsächlich gemessenen Werten gegenübergestellt. Auf der linken Seite der Abbildung sind die Compounds aufgetragen, bei denen die Mo-

¹⁵ Das Modell von Tsai-Pagano wurde nur für die Berechnung der PLA-CF-Compounds angepasst.

dellgrenzen eingehalten werden. Rechts der gestrichelten Linie sind die Compounds, bei denen die Modellgrenzen z.B. durch erhöhte L/d-Verhältnisse oder unterschiedliche PP-Matrices, überschritten werden.

Es wird deutlich, dass die gemessenen Zugfestigkeitswerte innerhalb der Modellgrenzen sehr gut durch die Modellberechnungen widerspiegelt werden. Bei Überschreitung der Modellgrenzen zeigen sich allerdings große Unterschiede zwischen berechneten und tatsächlich gemessenen Werten. Bei den Compounds mit den unterschiedlichen PP-Matrices und dem erhöhten Faseranteil (CF B800 (EP500V) und CF B800 (EP3307)) sind die Unterschiede schon deutlich erkennbar und betragen teilweise mehr als 100% des Messwerts. Bei dem PP-Viskosefaser-Compound wird jedoch die begrenzte Eignung der angepassten Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeit deutlich.

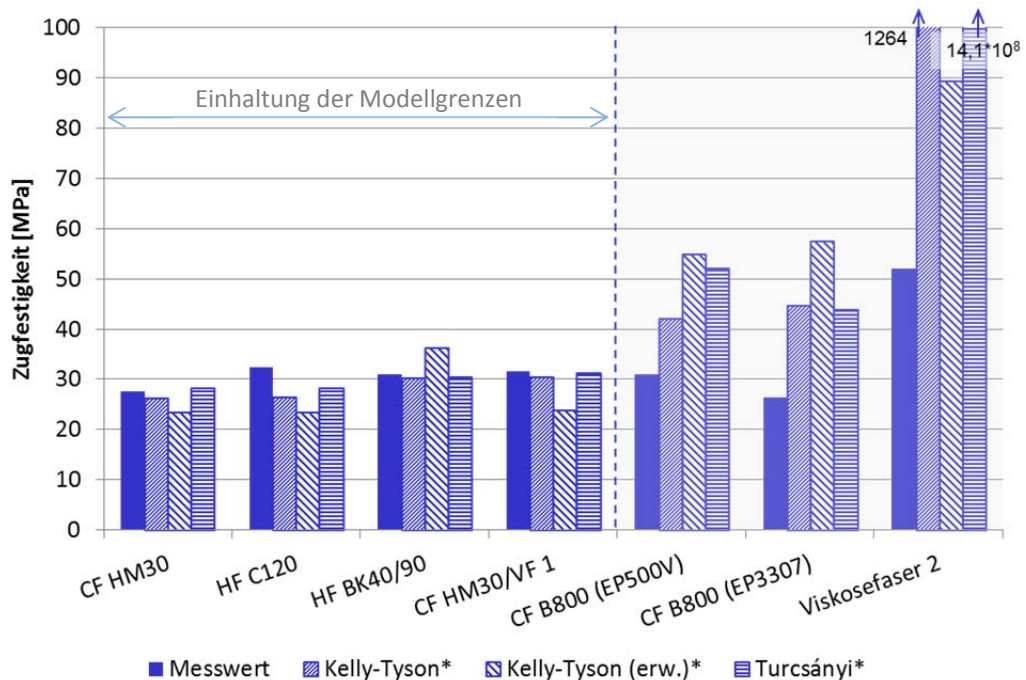


Abbildung 6-16: Vergleich der berechneten und gemessenen Zugfestigkeitswerte für die PP-Faser-Compounds (gestrichelte Linie markiert die Compounds außerhalb der Modellgrenzen)

Die angepassten Modelle zur Berechnung der Zugfestigkeit der PP-Compounds sind offensichtlich nur innerhalb der Modellgrenzen anwendbar.

In Abbildung 6-17 sind die Ergebnisse der Berechnungen für die angepassten Modelle der Zugfestigkeiten für die PLA-Compounds im Vergleich zu den Messwerten grafisch dargestellt. Auf der linken Seite der Grafik werden die Modellgrenzen durch die Variation der Compound-Zusammensetzungen nicht überschritten.

Bei der Betrachtung der Ergebnisse werden die relativ hohen Schwankungen zwischen den gemessenen Zugfestigkeitswerten und den berechneten Modellwer-

ten, auch schon innerhalb der Modellgrenzen, deutlich. Bei den PLA-Cellulosefaser-Compounds wird die beste Übereinstimmung mit den Messwerten durch das angepasste Modell von Turcsányi erreicht, bei den Hanfstaub-PLA-Compounds dagegen durch das angepasste Modell von Cox-Krenchel. Bei der Überschreitung der Modellgrenzen zeigt sich ein vielfältiges Bild. Bei dem PLA-Hanfstaub-Compound mit dem erhöhten Füllstoffanteil von 40 wt.-% sind die berechneten Werte aller angepassten Modelle sehr nahe am Messwert. Bei den PLA-Compounds mit dem erhöhten Faser-L/d-Verhältnis zeigt sich allerdings, dass die angepassten Modelle nach Turcsányi und Cox-Krenchel diesen Messbereich nicht abbilden können. Die berechneten Zugfestigkeitswerte sind teilweise in einem unwahrscheinlich hohen Bereich oder sogar negativ.

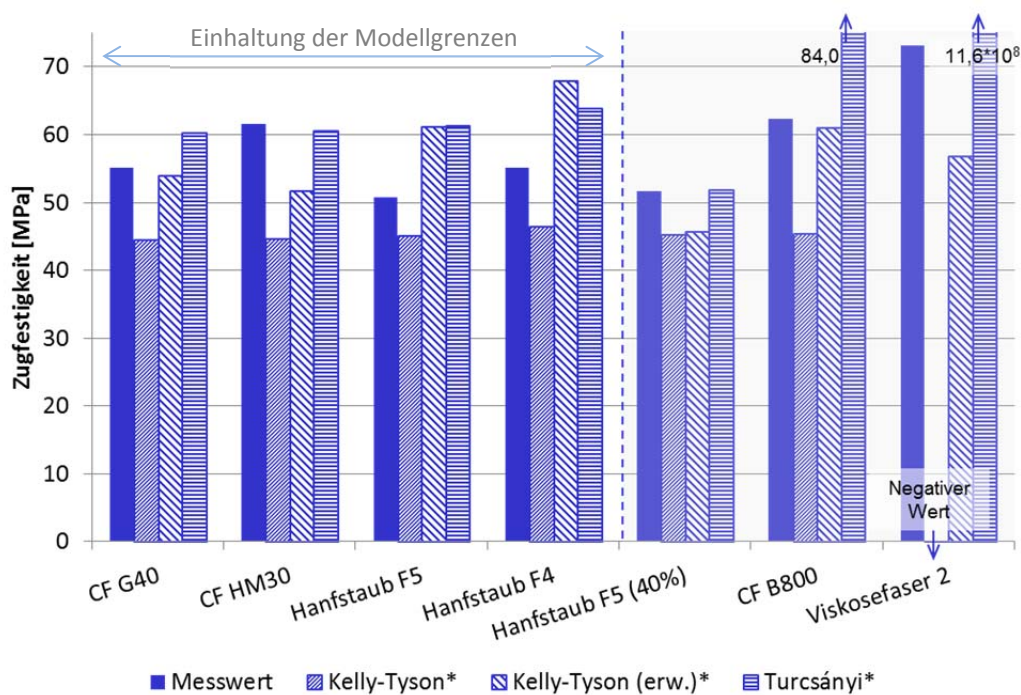


Abbildung 6-17: Vergleich der berechneten und gemessenen Zugfestigkeitswerte für die PLA-Faser-Compounds (gestrichelte Linie markiert die Compounds außerhalb der Modellgrenzen)

Die berechneten Werte anhand des angepassten erweiterten Modells von Kelly-Tyson weichen dagegen relativ gering von den Messwerten ab und zeigen somit eine Robustheit des Modells auch außerhalb der Modellgrenzen.

Die jeweilige mittlere prozentuale Abweichung der berechneten Zugfestigkeitswerte für die PP- und PLA-Compounds von den Messwerten innerhalb und außerhalb der Modellgrenzen ist in Tabelle 6-9 dargestellt.

Tabelle 6-9: Mittlere Abweichung der berechneten Zugfestigkeitswerte für die PP- und PLA-Compounds innerhalb und außerhalb der Grenzen der jeweiligen Modelle

Mittlere Abweichung vom Messwert <u>innerhalb</u> der Modellgrenze [%]			
	Kelly-Tyson*	Kelly-Tyson (erw.)*	Turcsányi*
PP-Compounds	7,9	20,9	4,5
PLA-Compounds	18,4	15,5	12,0
Mittlere Abweichung vom Messwert <u>außerhalb</u> der Modellgrenze [%]			
	Kelly-Tyson*	Kelly-Tyson (erw.)*	Turcsányi*
PP-Compounds	>100	89,0	>100
PLA-Compounds	>100	12,0	>100

Die mittlere prozentuale Abweichung der Zugfestigkeitswerte innerhalb der Modellgrenzen für die Gesamtbetrachtung der angepassten Modelle (PP- und PLA-Compounds) ist bei dem Modell von Turcsányi am geringsten. Die Einbeziehung der Compounds, die außerhalb der Modellgrenze liegen, zeigt aber die bessere Eignung des erweiterten angepassten Modells von Kelly-Tyson. Allerdings ist auch bei diesem Modell bei den PP-Compounds eine sehr hohe mittlere Abweichung von den Messwerten vorhanden. Allerdings wurden bei den PP-Faser-Compounds sowohl der Faseranteil als auch das L/d-Verhältnis der verwendeten Fasern erhöht. Weiterhin wurden verschiedene PP-Matrices verwendet. Diese Variation dreier Parameter außerhalb der Modellgrenzen kann ebenfalls die Ursache für die relativ hohe Abweichung der Werte des angepassten erweiterten Cox-Krenchel-Modells sein. Die mittlere Abweichung bei den PLA-Compounds liegt bei nur 12,0%. Hier wäre der Vergleich mit einem PP-Compound mit weniger Variation außerhalb der Modellgrenzen für eine weitere Überprüfung des erweiterten angepassten Modells nach Cox-Krenchel sinnvoll. Solch ein Compound müsste jedoch eigens hergestellt werden.

Für die Vorhersage der Zugfestigkeiten innerhalb der oben beschriebenen Modellgrenzen für PP- und PLA-Compounds ist das angepasste Modell von Turcsányi am besten geeignet. Die mittlere prozentuale Abweichung der berechneten Werte ist am geringsten. Bei einer Überschreitung der Modellgrenzen, insbesondere bei Erhöhung des L/d-Verhältnisses der Fasern ist die Verwendung des angepassten erweiterten Modells nach Cox-Krenchel sinnvoller.

6.5 Fazit zur Vorhersage der Compouneigenschaften

Die Ergebnisse der Modellanpassungen zur Vorhersage der Compouneigenschaften relative Viskosität, E-Modul und Zugfestigkeit werden in diesem Abschnitt kurz zusammengefasst.

Das angepasste Modell nach Brodnyan zur Vorhersage der relativen Viskosität eignet sich bei der Anwendung auf die PP-Cellulosefaser-Compounds sehr gut. Bei einer Übertragung auf andere PP-Faser-Compounds zeigt sich eine höhere Abweichung der berechneten Werte von den gemessenen, für eine grobe Abschätzung der resultierenden relativen Viskosität ist das Modell aber ausreichend. Für die Berechnung der relativen Viskosität der PLA-Cellulosefaser-Compounds ist das angepasste Modell ebenfalls hilfreich, bei der Anwendung auf andere PLA-Faser-Compounds ist die mittlere prozentuale Abweichung mit 20,1% verhältnismäßig gering und ebenfalls für eine Vorhersage der relativen Viskosität geeignet.

Für die Vorhersage der E-Moduln der Compounds werden verschiedene Modelle verglichen und angepasst. Für die Cellulosefaser-Compounds hat sich für die PP-Matrix das (nicht angepasste) Modell von Tsai-Pagano und für die PLA-Matrix das angepasste Modell von Halpin-Tsai als am besten geeignet erwiesen. Die Unterschiede zwischen den einzelnen Modellen sind dagegen gering. Bei der Anwendung auf andere Faser-Compounds zeigt sich, dass sich bei Einhaltung der Modellgrenzen für die PP-Compounds das angepasste Modell von Halpin-Tsai und für die PLA-Compounds das angepasste Modell von Tsai-Pagano am besten eignet. Außerhalb der Modellgrenzen, also bei Überschreitung des untersuchten Bereichs des L/d-Verhältnisses oder des Faseranteils, ist für die PP-Compounds der Einsatz des (nicht angepassten) Modells nach Tsai-Pagano und für die PLA-Compounds das angepasste Modell nach Halpin-Tsai am sinnvollsten. Insgesamt erweist sich das Modell nach Tsai-Pagano als optimal zur Vorhersage der E-Moduln der Compounds, da es sowohl für die PP-/PLA-Cellulosefaser- als auch für die PP-/PLA-Faser-Compounds inner- und außerhalb der Modellgrenzen geringe Abweichungen zu den Messwerten aufzeigt.

Die Vorhersage der Zugfestigkeit für die PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds ist mit Hilfe des angepassten Modells nach Turcsányi mit den geringsten Abweichungen zu den Messwerten möglich. Für die Anwendung auf andere Naturfaser-Compounds eignet sich dieses Modell innerhalb der Modellgrenzen sowohl für die PP- als auch die PLA-Compounds am besten. Bei der Überschreitung der Modellgrenzen, insbesondere durch die deutliche Erhöhung des L/d-Verhältnisses der verwendeten Fasern, versagt das angepasste Modell nach Turcsányi, die Abweichung ist >100%. Das angepasste erweiterte Modell nach Cox-Krenchel ist besser geeignet, hier ist aber bei den PP-Compound ebenfalls eine hohe Abweichung der berechneten Werte von den Messwerten von 89% festzustellen. Für

eine Abschätzung der Zugfestigkeitswerte der Compounds außerhalb der Modellgrenzen sind die Modelle demnach nicht anwendbar. Es müssen weiterführende Untersuchungen zur Ausweitung der Modelle durchgeführt werden.

7 Schlussfolgerungen

7.1 Überprüfung der aufgestellten Hypothesen

In diesem Abschnitt werden die Hypothesen, die in Kapitel 1.2 aufgestellt wurden, aufgegriffen und mit den Ergebnissen aus den entsprechenden Untersuchungen verglichen.

Hypothese 1: *Die Variation der verfahrenstechnischen Parameter während der Compoundierung hat signifikanten Einfluss auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen wie z.B. die Schmelzetemperatur oder den Spezifischen Mechanischen Energieeintrag.*

Die Hypothese hat sich teilweise bestätigt. Die verfahrenstechnischen Zielgrößen Schmelzetemperatur, Spezifischer Mechanischer Energieeintrag und Druck vor der Düse werden hauptsächlich vom Spezifischen Füllgrad, der Schneckendrehzahl und der Wechselwirkung zwischen diesen beiden Faktoren beeinflusst. Die Höhe der Wechselwirkung der beiden Parameter ist abhängig vom Cellulosefaser-Anteil im Compound. Die weiteren untersuchten verfahrenstechnischen Parameter, Atmosphärische Rückwärtsentgasung und Vakuumentgasung, weisen nur einen sehr geringen und deshalb vernachlässigbaren Einfluss auf die verfahrenstechnischen Zielgrößen auf.

Die Variation der Schneckenkonfigurationen hat gezeigt, dass ein höherer Spezifischer Mechanischer Energieeintrag in Verbindung mit einer geringeren Scherwirkung der Schneckenkonfigurationen einhergeht. Durch die geringere Energiezufuhr ergeben sich niedrigere Compound-Temperaturen und in der Folge eine höhere Schmelzeviskosität. Aus diesem Grund ist mehr Energie zum Einmischen der Cellulosefasern in die Kunststoffschmelze notwendig. Hierdurch kommt es zu einer höheren thermischen Schädigung der Cellulosefasern.

Hypothese 2: *Die Variation der verfahrenstechnischen Parameter hat ebenfalls Einfluss auf die materialtechnischen Zielgrößen wie z.B. Zugfestigkeit, Schlagzähigkeit oder Viskosität.*

Diese Hypothese ist nur eingeschränkt richtig. Der Einfluss der verfahrenstechnischen Parameter bzw. Faktoren auf die materialtechnischen Zielgrößen beschränkt sich sowohl bei den PP-Cellulosefaser- als auch den PLA-Cellulosefaser-Compounds auf die Farbgebung des Extrudats (L^* - und b^* -Wert) und bei den PP-CF-Compounds zusätzlich auf die Viskosität. Die thermische Schädigung der Cellulosefasern wird hauptsächlich von den Faktoren Spezifischer Füllgrad und Schneckendrehzahl induziert. Die weiteren materialtechnischen Zielgrößen bleiben jedoch unbeeinflusst.

Hypothese 3: *Durch die geeignete Auswahl und Einstellung der Parameter bei der Extrusion der Cellulosefaser-Compounds kann eine schonende Herstellung gewährleistet werden.*

Diese Hypothese konnte bestätigt werden. Sowohl bei den PP- als auch bei den PLA-Cellulosefaser-Compounds wurde eine Durchsatzmaximierung bei gleichzeitig moderater thermischer Schädigung der Cellulosefasern erreicht. Bei der Compoundierung der Cellulosefasern mit PLA ergab sich allerdings ein deutlich höherer Durchsatz bei gleichzeitig höherem Cellulosefaser-Anteil.

Hypothese 4: *Die beiden Matrices PP und PLA unterscheiden sich in Bezug auf die Herstellung und resultierende Eigenschaften der Cellulosefaser-Compounds.*

Diese Hypothese konnte bestätigt werden. Der Vergleich von PP und PLA als Matrixkunststoffe zeigt, dass bei der Compoundierung von PLA mit Cellulosefasern höhere Durchsätze möglich sind bei gleichzeitig höherem Faseranteil. Bei der Herstellung der PLA-Compounds ergeben sich zudem höhere Werte für den Spezifischen Mechanischen Energieeintrag. Bei den PP-Cellulosefaser-Compounds wird eine deutlich bessere Anbindung der Cellulosefasern an die polymere Matrix erreicht.

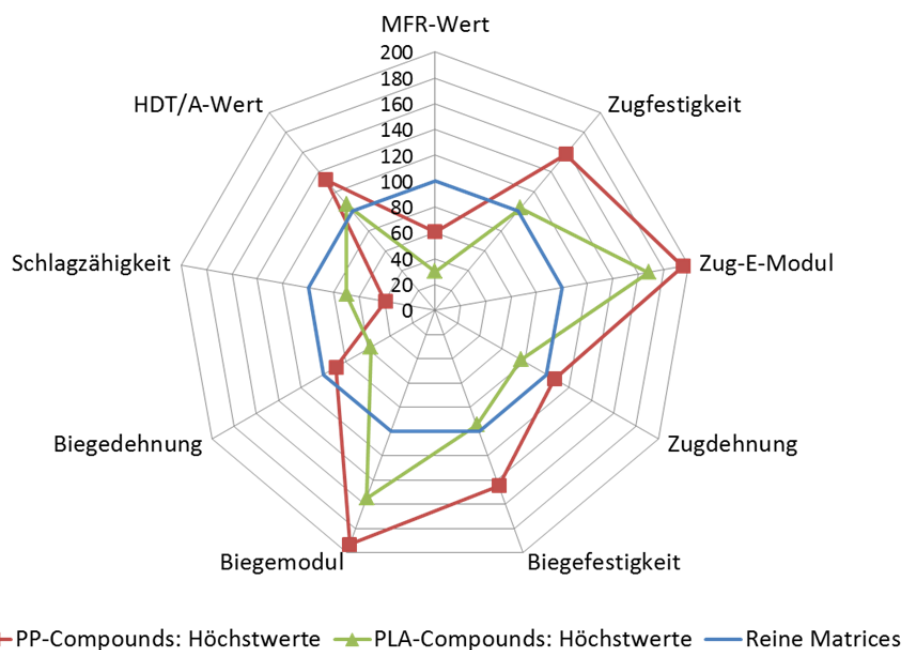


Abbildung 7-1: Vergleich der optimalen Kennwerte von PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds

Dies ist sowohl in den mechanischen Kennwerten (siehe Abbildung 7-1), als auch bei der Betrachtung von REM-Bildern von Bruchflächen der Probenkörper (siehe Abbildung 5-16, S. 100) deutlich erkennbar. Aus diesen Gründen ist die Entwicklung eines wirtschaftlichen, kommerziell verfügbaren Haftvermittlers für PLA unbedingt notwendig.

Grundsätzlich ist bei der Compoundierung sowohl von PP- als auch PLA-Cellulosefaser-Compounds ein hoher Spezifischer Füllgrad in Verbindung mit einer möglichst geringen Drehzahl zu bevorzugen. Diese Kombination führt zu wenig thermischer Schädigung der Cellulosefasern bei einem gleichzeitig hohen Durchsatz und einem relativ geringen Spezifischen mechanischen Energieeintrag. Durch den resultierenden hohen Druck vor der Düse wird eine gleichmäßige Abführung und Granulierung der Schmelzestränge erreicht.

Hypothese 5: *Die Trocknung der Cellulosefasern vor der extrusionstechnischen Verarbeitung ist nicht zwingend notwendig.*

Diese Hypothese ist bedingt richtig. Die Herstellung der Compounds war auch bei erhöhter Faserfeuchtigkeit uneingeschränkt möglich. Bei den PP-Cellulosefaser-Compounds hat die Faserfeuchtigkeit lediglich Einfluss auf die L*- und b*-Werte, diese werden bei erhöhter Faserfeuchtigkeit positiv beeinflusst. Bei den PLA-Cellulosefaser-Compounds beeinflusst eine höhere Faserfeuchtigkeit in geringem Maße die Zugfestigkeit und in höherem Maße die Biegefestigkeit. Die Biegefestigkeit wird durch die Verwendung von feuchten Cellulosefasern im Vergleich zu trockenen Fasern um 10% herabgesenkt. Die anderen mechanischen Zielgrößen bleiben unbeeinflusst. Die thermische Schädigung der Cellulosefasern, festgestellt anhand der Verfärbung der Compounds, wird durch die höhere Faserfeuchte positiv beeinflusst.

Hypothese 6: *Die Trocknung des PLA vor der Verarbeitung ist trotz der Hydrolyseanfälligkeit des PLA nicht erforderlich.*

Diese Hypothese ist bedingt richtig. Die Ausgangsfeuchte des PLA hat bei ausreichender Entgasung einen geringen messbaren Einfluss auf die Materialeigenschaften der hergestellten PLA-CF-Compounds. Die Biegefestigkeit der PLA-CF-Compounds wird bei der Verwendung von feuchtem PLA um ca. 2% im Vergleich zu den Compounds mit trockenem PLA herabgesenkt. Das Molekulargewicht des PLA-Anteils der hergestellten Compounds verringert sich nicht signifikant durch die Verwendung von feuchtem PLA.

Hypothese 7: *Die morphologischen Eigenschaften der Cellulosefasern wie z.B. mittlere Länge und L/d-Verhältnis haben Einfluss auf die Compouneigenschaften.*

Diese Hypothese hat sich bestätigt. Die Verwendung von langen Cellulosefasern mit einem hohen Länge-zu-Durchmesser-Verhältnis (L/d-Verhältnis) bewirkt eine Maximierung der mechanischen Kennwerte. Die Viskosität der Cellulosefaser-Compounds ist sehr stark abhängig von der Länge und dem L/d-Verhältnis der Cellulosefasern. Mit zunehmendem L/d-Verhältnis nimmt die Fließfähigkeit der Cellulosefaser-Compounds ab. Oberhalb einer mittleren Faserlänge von 100 µm in Verbindung mit einem mittleren L/d-Verhältnis von >5 ist weiterhin eine er-

höhte Agglomerationsneigung der Cellulosefasern festzustellen. Die Verteilung des L/d-Verhältnisses hat dagegen keinen Einfluss auf die mechanischen und optischen Eigenschaften der PP- und PLA-Compounds, wirkt sich aber auf die relative Viskosität der Compounds aus. Die vorherige Komprimierung der Cellulosefasern bewirkt eine deutliche Verringerung der mechanischen Kennwerte der Compounds, die Fließfähigkeit ist vergleichsweise sehr hoch.

Hypothese 8: *Die Herkunft der Cellulosefasern (Laub- oder Nadelholz) hat einen signifikanten Einfluss auf die Eigenschaften der Compounds.*

Diese Hypothese hat sich als unrichtig erwiesen. Die Herkunft der Cellulosefasern (Soft- oder Hardwood) hat keinen Einfluss auf die mechanischen oder rheologischen Eigenschaften der Compounds.

Hypothese 9: *Die eigenschaftsbestimmenden morphologischen Faktoren der Cellulosefasern können zur Vorhersage der Compouneigenschaften anhand von mechanischen und rheologischen Modellen verwendet werden. Diese können wiederum auch auf andere (Natur-)Fasercompounds übertragen werden.*

Diese Hypothese ist bedingt richtig. Im Falle der relativen Viskosität eignen sich die angepassten Modelle im untersuchten Bereich der Cellulosefasern für eine Vorhersage. Bei der Übertragung auf andere Naturfaser-Compounds trifft die Eignung ebenfalls für die PP- und PLA-Naturfaser-Compounds zu. Die Vorhersage der E-Moduln ist für die PP- und PLA-Matrix mittels des (angepassten) Modells nach Tsai-Pagano uneingeschränkt möglich. Die Berechnung der Zugfestigkeiten für die Cellulosefaser-Compounds ist innerhalb der Modellgrenzen sehr gut möglich, bei zu hohen L/d-Verhältnissen der verglichenen Fasern in den Compounds versagen die Modelle allerdings.

Hypothese 10: *Durch die Variation der Dispergierungszonen können Faseragglomerate bei längeren Cellulosefasertypen reduziert bzw. verhindert werden.*

Diese Hypothese ist richtig. Durch die Variation der Faserdispergierungszonen mit Erhöhung der Scher- und Mischwirkung und Erhöhung der Schneckendrehzahlen reduzieren sich die Faseragglomerate. Dies führt allerdings zu einer erhöhten thermischen Schädigung der Cellulosefasern und zu einer Abnahme der mechanischen Kennwerte.

7.2 Weitere wesentliche Erkenntnisse

Durch den möglichen **Verzicht auf die Vortrocknung** kann der Verfahrensaufwand deutlich reduziert, zusätzlich können Energie- und Anschaffungskosten für Trockner eingespart werden. Bei der Verarbeitung von feuchten Materialien muss selbstverständlich eine ausreichende und zügige Abfuhr des entstehenden Wasserdampfes durch Entgasungszonen gewährleistet sein. In der Praxis muss

demnach die Frage gestellt werden, ob die Maximierung der Biegefestigkeit bei den PLA-CF-Compounds den Aufwand der Materialvortrocknung des PLA und der Cellulosefasern rechtfertigt.

Die **Verfärbung**, und somit auch die thermische Schädigung der Cellulosefaser-Compounds, werden maßgeblich vom Spezifischen Füllgrad beeinflusst. Die Variation der Schneckendrehzahl hat deutlich geringere Auswirkungen. Die Verfärbung hängt nicht direkt mit der resultierenden Schmelzetemperatur zusammen, sie ist vielmehr ein Produkt von Schneckendrehzahl und Spezifischem Füllgrad und somit zudem stark von der Verweilzeit der Materialien im Extruder abhängig. Aufgrund der Wechselwirkungen von Schneckendrehzahl und Spezifischem Füllgrad können diese Faktoren nicht getrennt bei der Beurteilung der Verfärbung der Cellulosefaser-Compounds betrachtet werden.

Im **Vergleich aller untersuchten Cellulosefaser-Typen** hat sich die BC200-Type als die am besten geeignete herausgestellt. Dies gilt sowohl beim Einsatz in der PP- als auch in der PLA-Matrix. Bei der Verwendung dieser Cellulosefaser-Mischung werden vergleichsweise hohe mechanische Kennwerte in Verbindung mit geringer Agglomeration der Cellulosefasern und einer hinnehmbaren Viskositäts-erhöhung der Compoundschmelze erzielt. Bei dieser Fasermischung ist außerdem ein sehr gutes Verhältnis von Faserlänge und L/d-Verhältnis gegeben.

8 Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung der einflussgebenden Parameter bei der extrusionstechnischen Herstellung von cellulosefaserverstärkten thermoplastischen Compounds. Die Verarbeitung dieser Compounds findet mittels eines gleichsinnig drehenden Doppelschneckenextruders statt. Als Matrixkunststoffe dienen Polypropylen (PP) und Polylactid (PLA). Die hergestellten Compounds sollen im spritzgießtechnischen Bereich verwendet werden.

Bei der Compoundierung der Materialien werden verfahrenstechnische Zielgrößen ermittelt. Diese sind der Spezifische Mechanische Energieeintrag, der Druck vor der Düse und die Schmelzetemperatur. Im Anschluss an die Extrusion werden die materialtechnischen Zielgrößen ermittelt. Dies sind Zug- und Biegeeigenschaften, Wärmeformbeständigkeit, Schlagzähigkeit, Fließverhalten, Farbe und das Maß der Agglomeration. Auf diese Weise kann eine umfassende Charakterisierung erfolgen und eventuelle Beeinflussungen der Materialkennwerte werden identifiziert.

Zunächst erfolgt die Untersuchung der verfahrenstechnischen Faktoren wie z.B. Schneckendrehzahl, Spezifischer Füllgrad und Schneckenkonfiguration. Hierbei werden die Auswirkungen nach verfahrenstechnischen und materialtechnischen Zielgrößen unterteilt. In einem Screening-Versuchsplan erfolgt in einem ersten Schritt die Trennung der einflussgebenden von den irrelevanten Faktoren. Ein zweiter Versuchsdurchlauf dient der genaueren Untersuchung der beeinflussten Faktoren hinsichtlich der Auswirkungen auf die verfahrens- und materialtechnischen Zielgrößen. Dieses Vorgehen wird leicht angepasst sowohl für die PP-, als auch für die PLA-Cellulosefaser-Compounds durchgeführt.

Anschließend werden verschiedene Cellulosefaser-Typen hinsichtlich ihrer fasermorphologischen Eigenschaften wie z.B. der mittleren Faserlänge, dem mittleren Länge-zu-Durchmesser-Verhältnis oder der Herkunft (Laub- oder Nadelholz) untersucht. Hierfür erfolgt der Vergleich von insgesamt acht verschiedenen Cellulosefasertypen.

Eine vierte Versuchsphase dient der Untersuchung des Einflusses verschiedener Faserdispergierungszonen auf die Agglomeration der Cellulosefasern im Compound. Dazu werden Dispergierungszonen mit unterschiedlichen Misch- und Scherwirkungen bei variierender Schneckendrehzahl verglichen.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Schneckendrehzahl, der Spezifische Füllgrad sowie die Wechselwirkung der beiden Faktoren die einflussgebenden verfahrenstechnischen Parameter sind. Diese beeinflussen maßgeblich die Schmelzetemperatur, den Druck vor der Düse, den Spezifischen Mechanischen Energieeintrag sowie die Farbgebung und die Viskosität der PP-Cellulosefaser-Compounds. Die Cellulosefaser-Feuchtigkeit hat einen positiven Einfluss auf die Farbgebung der

Compounds, bei höherer Feuchtigkeit findet eine geringere thermische Schädigung der Cellulosefasern statt. Bei den PLA-Compounds führt eine höhere Feuchtigkeit jedoch zu einer abnehmenden Biegefestigkeit. Die weiteren mechanischen Kennwerte werden nicht beeinträchtigt und ein Molmassen-Abbau findet nicht statt. Aus diesen Gründen kann auf eine Vortrocknung der Cellulosefasern auch bei PLA, bei ausreichender Entgasung während der Verarbeitung, verzichtet werden.

Die morphologischen Eigenschaften der Cellulosefasern beeinflussen die Kennwerte der PP- und PLA-Compounds. Cellulosefasern mit einer hohen mittleren Länge und einem hohen mittleren L/d-Verhältnis verbessern die mechanischen Eigenschaften. Bei einer mittleren Länge von über 100 µm und einem mittleren L/d-Verhältnis >5 ist allerdings eine verstärkte Agglomerationsneigung der Cellulosefasern festzustellen. Die Viskosität der Compounds steigt außerdem mit zunehmender Faserlänge und zunehmendem L/d-Verhältnis stark an. Die Kompromittierung der Cellulosefasern vor der Verarbeitung führt zu verringerten mechanischen Kennwerten, aber gleichzeitig zu einer vergleichsweise besseren Fließfähigkeit. Die Herkunft und die Verteilung des L/d-Verhältnisses der Cellulosefasern haben keinen Einfluss auf die Eigenschaften der hergestellten Compounds.

Der Vergleich zwischen PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds zeigt, dass die PP-Compounds über eine deutlich bessere Anbindung zwischen Faser und Matrix verfügen. Dies führt zu deutlich höheren mechanischen Kennwerten im Vergleich zu den reinen Matrixkunststoffen. Weiterhin kann in die PLA-Matrix ein höherer Faservolumenanteil bei gleichzeitig höheren Durchsätzen eingearbeitet werden.

Die Berechnung der Eigenschaften der PP- und PLA-Cellulosefaser-Compounds ist mithilfe von teilweise angepassten Modellen möglich. Diese Modelle können auch auf andere PP- und PLA-Fasercompounds übertragen werden. Bei der Überschreitung der betrachteten Modellgrenzen ist dies allerdings nur für die Berechnung der E-Moduln der Compounds möglich.

Die grundlegenden Ergebnisse dieser Arbeit sind auf die Verarbeitung von anderen PP- und PLA-Naturfaser-Compounds anwendbar. Insbesondere der Frage nach der Verarbeitung von feuchten Naturfasern sollte bei noch höheren Faseranteilen nachgegangen werden. Weiterhin ist auch die Betrachtung anderer Matrixsysteme (wie z.B. ABS oder PA) interessant, unter Umständen können dadurch allgemeingültige Zusammenhänge ermittelt werden. Um die Faser-Matrix-Anbindung bei den PLA-Compounds zu verbessern ist unbedingt die Entwicklung eines kommerziell verfügbaren und wirtschaftlichen Haftvermittlers anzustreben.

Literaturverzeichnis

- [1] Almeida, J.R.M. and Carvalho, L.H. de 1998. An investigation on the tensile strength of particulate filled polymeric composites. *Journal of Materials Science*. 33, (1998), 2215–2219.
- [2] Andersen, P.G. 1994. Mixing and Compounding of Polymers: Theory and Practice. I. Manas-Zloczower and Z. Tadmor, eds. Carl Hanser Verlag GmbH & Company KG. 679–705.
- [3] Arias, A., Heuzey, M.-C. and Huneault, M.A. 2013. Thermomechanical and crystallization behavior of polylactide-based flax fiber biocomposites. *Cellulose*. 20, (2013), 439–452.
- [4] Auras, R., Harte, B. and Selke, S. 2004. An Overview of Polylactides as Packaging Materials. *Macromolecular Bioscience*. 4, (2004), 835–864.
- [5] Aurich, T. 2000. *Spritzgießen und resultierende Verbundeigenschaften von flachsfaserverstärktem Polypropylen*. Technische Universität Chemnitz.
- [6] Aurich, T. and Mennig, G. 1999. Spritzgießen von naturfaserverstärktem Polypropylen. *KU Kunststoffe*. 89/3, (1999), 30–32.
- [7] Avella, M., Bogoeva-Gaceva, G., Buzarovska, A., Errico, M.E., Gentile, G. and Grozdanov, A. 2008. Poly(lactic acid)-Based Biocomposites Reinforced with Kenaf Fibers. *Journal of Applied Polymer Science*. 108, (2008), 3542–3551.
- [8] Baiardo, M., Zini, E. and Scandola, M. 2004. Flax fibre-polyester composites. *Composites: Part A*. 35, (2004), 703–710.
- [9] Bandyopadhyay-Ghosh, S., Ghosh, S.B. and Sain, M. 2010. Industrial Applications of Natural Fibres - Structure, Properties and Technical Applications. J. Müssig, ed. John Wiley & Sons. 459–480.
- [10] Basu, S. 2012. *Tensile Deformation of Fibers Used in Textile Industry - Application Note*. Agilent Technologies, Inc.
- [11] Baur, E., Block, T., Dickert, M. and Joas, S. 2009. *NF-Guidelines - Erstellung von Konstruktionsregelwerken für das Spritzgießen und Formpressen von naturfaserverstärkten Kunststoffen, Abschlussbericht*. M-Base Engineering + Software GmbH, Faurecia Innenraum Systeme GmbH, Faserinstitut Bremen e.V., Institut für Polymerwerkstoffe und Kunststoffe - TU Clausthal.
- [12] Bawiskar, S. and White, J.L. 1998. Melting Model for Modular Self Wiping Co-Rotating Twin Screw Extruders. *POLYMER ENGINEERING AND SCIENCE*. 38, Issue 5, (1998), 727–740.
- [13] Beaugrand, J. and Berzin, F. 2012. Lignocellulosic Fiber Reinforced Composites: Influence of Compounding Conditions on Defibrization and Mechanical Properties. *Journal of Applied Polymer Science*. 128, (2012), 1227–1238.

- [14] Beg, M.D.H. and Pickering, K.L. 2007. The Effects of Residual Lignin Content on Wood Fibre Reinforced Polypropylene Composites. *Advanced Materials Research*. 29-30, (2007), 323–326.
- [15] Biagiotti, J., Fiori, S., Torre, L., López-Manchado, M.A. and Kenny, J.M. 2004. Mechanical properties of polypropylene matrix composites reinforced with natural fibers: A statistical approach. *Polymer Composites*. 25, (2004), 26–36.
- [16] Biagiotti, J., Puglia, D. and Kenny, J.M. 2004. A Review on Natural Fibre-based Composites-Part I. *Journal of Natural Fibers*. 1 (2), (2004), 37–68.
- [17] Bledzki, A.K. and Faruk, O. 2004. Creep and impact properties of wood fibre-polypropylene composites: influence of temperature and moisture content. *Composites Science and Technology*. 64, (2004), 693–700.
- [18] Bledzki, A.K., Jazskiewicz, A., Urbaniak, M. and Stankowska-Walczak, D. 2012. Biocomposites in the Past and in the Future. *Fibres & Textiles in Eastern Europe*. 20, (2012), 15–22.
- [19] Borysiak, S., Paukszta, D., Batkowska, P. and Mankowski, J. 2011. Cellulose Fibers: Bio- and Nano-Polymer Composites. S. Kalia, B. Kaith, and I. Kaur, eds. Springer-Verlag, Berlin. 263–290.
- [20] Bos, H. 2004. *The Potential of Flax Fibres as Reinforcement for Composite Materials*. Technische Universität Eindhoven.
- [21] Bos, J.H., Veenstra, P., Verhoeven, H. and Vos, P.D. de 1999. *Das Papierbuch - Handbuch der Papierherstellung*. EPN Verlag, Houten.
- [22] Bürkle, E., Scheel, G. and Darnedde, L. 2009. Energieeffiziente Verarbeitung naturfaserverstärkter Kunststoffe. *Kunststoffe*. 2, (2009), 39–44.
- [23] Cabral, H., Cisneros, M., Kenny, J.M., Vazquez, A. and Bernal, C.R. 2005. Structure-Properties Relationship of Short Jute Fiber-reinforced Polypropylene Composites. *Journal of Composite Materials*. 39, (2005), 51–65.
- [24] Carus, M. 2011. Market overview of Wood Plastic Composites and other Bio-Composites. *4th German WPC Congress* (2011).
- [25] Carus, M. and Gahle, C. Natural fibre reinforced plastics - material with future. nova-institut GmbH Hürth, Internetquelle, abgerufen am 17.04.2014, 08:22 Uhr, <http://www.eucia.eu/uploads/06137979123ba38457032b4052629d21.pdf>.
- [26] Carus, M., Gahle, C., Pendarovski, C., Vogt, D., Ortmann, S., Grotenhermen, F., Breuer, T. and Schmidt, C. *Studie zur Markt- und Konkurrenzsituation bei Naturfasern und Naturfaser-Werkstoffen (Deutschland und EU)*. FNR, Gülzow.
- [27] Chandramohan, D. and Marimuthu, K. 2011. A Review on Natural Fibers. *International Journal of Research and Reviews in Applied Sciences*. 8, (2011), 194–206.

- [28] Cox, H.L. 1952. The elasticity and strength of paper and other fibrous materials. *British Journal of Applied Physics*. 3, (1952), 72–79.
- [29] Crowson, R.J., Folkes, M.J. and Bright, P.F. 1980. Rheology of Short Glass Fiber-Reinforced Thermoplastics and its Application to Injection Molding I. Fiber Motion and Viscosity Measurement. *Polymer Engineering and Science*. 20, (1980), 925–933.
- [30] Dalvåg, H., Klason, C. and Strömvall, H.-E. 1985. The Efficiency of Cellulosic Fillers in Common Thermoplastics. Part II. Filling with Processing Aids and Coupling Agents. *International Journal of Polymeric Materials and Polymeric Biomaterials*. 11, (1985), 9–38.
- [31] Ding, W., Kuo, P., Kuboki, T., Park, C.B. and Sain, M. 2013. Foaming of Cellulose Fiber Reinforced Polylactic Acid Composites: The Effect of Cellulose Fiber Type. *Society of Plastics Engineers ANTEC* (2013).
- [32] Ehrenstein, G.W. 2006. *Faserverbund-Kunststoffe - Werkstoffe, Verarbeitung, Eigenschaften*. Hanser Verlag, München.
- [33] El-Sabbagh, A., Steuernagel, L. and Ziegmann, G. 2009. Processing and Modeling of the Mechanical Behavior of Natural Fiber Thermoplastic Composite: Flax/Polypropylene. *Polymer Composites*. 30, (2009), 510–519.
- [34] Endres, H.-J., Hausmann, K. and Helmke, P. 2006. Untersuchung des Einflusses unterschiedlicher Haftvermittler und Haftvermittlergehalte auf PP-Holzmehl-Compounds. *KGK - Kautschuk, Gummi, Kunststoffe*. 7/8, (2006), 399–404.
- [35] Endres, H.-J. and Siebert-Raths, A. 2009. *Technische Biopolymere*. Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG.
- [36] Etscheid, G. 2012. Ölförderung - "Es geht nicht ohne Verluste. *Die Zeit*. 37, (2012), <http://www.zeit.de/2012/37/Peak-Oil-Interview-Zittel-Oelfoerderung-Energie>, Stand: 16.04.2014, 16:07 Uhr.
- [37] Faruk, O., Bledzki, A.K. and Fink, M. H.-P. Sain 2012. Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000-2010. *Progress in polymer Science*. 37, (2012), 1552–1596.
- [38] Fischer, H., Knittel, D. and Opwis, K. 2008. *Verbesserung der Geruchseigenschaften von Naturfasern zur Öffnung neuer Märkte in den Bereichen Technische Textilien und Verbundwerkstoffe*. Books on Demand GmbH, Norderstedt.
- [39] Flemming, M. and Roth, S. 2003. *Faserverbundbauweisen - Eigenschaften*. Springer-Verlag, Berlin.
- [40] Foulk, J., Akin, D., Dodd, R. and Ulven, C. 2011. Cellulose Fibers: Bio- and Nano-Polymer Composites. S. Kalia, B.S. Kaith, and I. Kaur, eds. Springer. 61–95.
- [41] Franco, P.J. and Valadez-Gonzalez 2005. Natural Fibers, Biopolymers, and Biocomposites. A.K. Mohanty, M. Misra, and L.T. Drzal, eds. Taylor & Francis, Boca Raton. 177–230.

- [42] Frick, A. and Stern, C. 2011. *Praktische Kunststoffprüfung*. Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, München.
- [43] Gamon, G., Evon, P. and Rigal, L. 2013. Twin Screw extrusion impact on natural fibre morphology and material properties in poly(lactic acid) based biocomposites. *Industrial Crops and Products*. 46, (2013), 173–185.
- [44] Ganster, J. and Fink, H.-P. 2006. Novel cellulose fibre reinforced thermoplastic materials. *Cellulose*. 13, (2006), 271–280.
- [45] Gao, M. and Dai, Q.-J. 2006. Studies on Thermal Degradation of Cellulosic Fibers Treated with Flame Retardants. *The Chinese Journal of Process Engineering*. 4, (2006), 242–246.
- [46] Garkhail, S.K., Heijenrath, R.W.H. and Peijs, T. 2000. Mechanical Properties of Natural-Fibre-Mat-Reinforced Thermoplastics based on Flax Fibres and Polypropylene. *Applied Composite Materials*. 7, (2000), 351–372.
- [47] Garlotta, D. 2001. A Literature Review of Poly(Lactic Acid). *Journal of Polymers and the Environment*. 2, (2001), 63–85.
- [48] Gasparovic, L., Labovsky, J., Markos, J. and Jelemensky, L. 2012. Calculation of Kinetic Parameters of the Thermal Decomposition of Wood by Distributed Activation Energy Model (DAEM). *Chemical & Biochemical Engineering Quarterly*. 26, (2012), 45–53.
- [49] Gessner, W. 1955. *Naturfasern/Chemiefasern*. Fachbuchverlag Leipzig.
- [50] Gibson, R.F. 2012. *Principles of Composite Material Mechanics*. CRC Press, Taylor & Francis Group.
- [51] Giles Jr., H.F., Wagner Jr., J.R. and Mount III, E.M. 2005. *Extrusion - The Definitive Processing Guide and Handbook*. William Andrew Publishing.
- [52] Godavarti, S. 2005. Natural Fibers, Biopolymers, and Biocomposites. A.K. Mohanty, M. Misra, and L.T. Drzal, eds. Taylor & Francis, Boca Raton. 347–389.
- [53] Gotthold, K. and Zschäpitz, H. 2012. USA steigen zum weltgrößten Gasproduzenten auf. welt.de, Internetquelle, abgerufen am 16.04.2014, 16:27 Uhr, <http://www.welt.de/finanzen/article108276133/USA-steigen-zum-weltgroessten-Gasproduzenten-auf.html>.
- [54] Graupner, N. and Müssig, J. 2010. Industrial Applications of Natural Fibres - Structure, Properties and Technical Applications. J. Müssig, ed. John Wiley & Sons. 64.
- [55] Hargitai, H. 2004. *Reinforcing of Polypropylene with hydrophil Fibers*. Budapest University of Technology and Economics.
- [56] Heidemeyer, P. 2013. Verfahrenstechnik der Thermoplastextrusion. A. Limper, ed. Carl Hanser Verlag GmbH & Company KG. 70–108.
- [57] Helmke, P. 2013. *Optimierung der Verarbeitungs- Gebrauchs- und Entsorgungseigenschaften eines naturfaserverstärkten Kunststoffes unter Berücksichtigung automobiler Anforderungen*. Universität Rostock.

- [58] Henning, C. 1996. *Hanf, Teil 1 " Wissenschaftliche Untersuchung zum Thema Anbau, Ernte und Aufbereitung sowie Verwendung von Hanf*. Landwirtschaftsverlag.
- [59] Hepperle, J. 2007. Der gleichläufige Doppelschneckenextruder - Grundlagen, Technologien, Anwendungen. K. Kohlgrüber, ed. Carl Hanser Verlag, München. 37–58.
- [60] Hermans, P.H., Hermans, J.J. and Vermaas, D. 1946. Density of Cellulose Fibers. II. Density and Refractivity of Model Filaments. *Journal of Polymer Science*. 1, Nr. 3, (1946), 156–161.
- [61] Hochstein, B. 1997. *Rheologie von Kugel- und Fasersuspensionen mit viskoelastischen Matrixflüssigkeiten*. Universität Fridericiana Karlsruhe (Technische Hochschule).
- [62] Hubei DaTong Biological Chemical Technology Co., L. 2014. Angebot per E-Mail.
- [63] Hübschmann, U. and Links, E. 1998. *Tabellen zur Chemie in Ausbildung und Beruf*. Handwerk und Technik, Hamburg.
- [64] Huda, M.S., Drzal, L.T., Mohanty, A.K. and Misra, M. 2007. The effect of silane treated- and untreated-talc on the mechanical and physico-mechanical properties of poly(lactic acid)/newspaper fibers/talc hybrid composites. *Composites: Part B*. 38, (2007), 367–379.
- [65] Janda, R. 1990. *Kunststoffverbundsysteme - Grundlagen, Anwendung, Verarbeitung, Prüfung*. VCH, Weinheim.
- [66] Jandas, P.J., Mohanty, S. and Nayak, S.K. 2012. Mechanical Properties of Surface-Treated Banana Fiber/Polylactic Acid Biocomposites: A Comparative Study of Theoretical and Experimental Values. *Journal of Applied Polymer Science*. 127, (2012), 4027–4038.
- [67] Kaiser, M.R., Anuar, H.B., Samat, N.B. and Razak, S.B.A. 2013. Effect of processing routes on the mechanical, thermal and morphological properties of PLA-based hybrid biocomposite. *Iranian Polymer Journal*. 22, (2013), 123–131.
- [68] Kalam, A., Berhan, M.N. and Ismail, H. 2010. Physical and mechanical characterizations of oil palm fruit bunch fiber filled polypropylene composites. *Journal of Reinforced Plastics & Composites*. 29, (2010), 3173–3184.
- [69] Kalia, S., Kaith, B. and Kaur, I. 2011. Cellulose Fibers: Bio- and Nano-Polymer Composites. S. Kalia, B. Kaith, and I. Kaur, eds. Springer. v–vii.
- [70] Karger-Kocsis, J. 2004. Handbuch Verbundwerkstoffe - Werkstoffe, Verarbeitung, Anwendung. M. Neitzel and P. Mitschang, eds. Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG. 25–56.
- [71] Kazmer, O. 2007. *Injection Mold Design Engineering*. Carl Hanser Verlag GmbH & Co KG.
- [72] Kelly, A. and Tyson, W.. 1965. Tensile properties of fibre-reinforced metals: Copper/tungsten and copper/molybdenum. *Journal of the*

Mechanics and Physics of Solids (Journal of the Mechanics and Physics of Solids). 13, (1965), 329–350.

- [73] Klein, B. 2007. *Versuchsplanung-DoE*. Oldenbourg Wissenschaftsverlag, München.
- [74] Kleppmann, W. 2009. *Taschenbuch Versuchsplanung*. Carl Hanser Verlag GmbH & Company KG.
- [75] Koch, G. 2006. Handbook of Pulp. H. Sixta, ed. Wiley-VCH, Weinheim. 21–68.
- [76] Kohlgrüber, K. 2007. Der gleichläufige Doppelschneckenextruder - Grundlagen, Technologien, Anwendungen. K. Kohlgrüber, ed. Carl Hanser Verlag, München. 1–8.
- [77] Kokta, B.V. and Ahmed, A. 1998. Environmentally friendly Technologies for the Pulp and Paper Industry. R.A. Young and M. Akhtar, eds. John Wiley & Sons, Inc., New York, N.Y. 190–214.
- [78] Koplin, T., Endres, H.-J. and Schlosser, H. 2012. Biobased materials - 9th WPC, Natural Fibre and other innovative Composites Congress and Exhibition. Scientific Presentations. A.K. Bledzki and V.E. Sperber, eds. Carl Hanser Verlag GmbH & Company KG, München. B13–1 – B13–12.
- [79] Koplin, T., Endres, H.-J. and Ziegmann, G. 2013. Influence of the Melting Zone on Compounding of Cellulose Fiber reinforced Polylactide; in: 71st Annual Technical Conference of the Society of Plastics Engineers 2013 (ANTEC 2013), Cincinnati, Ohio, USA 22-24 April 2013, Volume 1 of 3
- [80] Kowalczyk, M., Piorkowska, E., Kulpinski, P. and Pracella, M. 2011. Mechanical and thermal properties of PLA composites with cellulose nanofibers and standard size fibers. *Composites: Part A*. 42, (2011), 1509–1514.
- [81] Krenchel, H. 1964. *Fibre Reinforcement - Theoretical and practical investigations of the elasticity and strength of fibre-reinforced materials*. Akademisk Forlag Copenhagen.
- [82] Kurniawan, D., Kim, B.S., Lee, H.Y. and Lim, J.Y. 2013. Effects of repetitive processing, wood content, and coupling agent on the mechanical, thermal, and water absorption properties of wood/ polypropylene green composites. *Journal of Adhesion Science and Technology*. 27, No. 12, (2013), 1301–1312.
- [83] Lapresa, G. 1998. *Industrielle Kunststoff Coloristik*. Hanser Verlag, München.
- [84] Lee, S.-H. and Wang, S. 2006. Biodegradable polymers/bamboo fiber biocomposite with bio-based coupling agent. *Composites: Part A*. 37, (2006), 80–91.
- [85] Lengyel, P. and Morvay, S. 1973. *Chemie und Technologie der Zellstoffherstellung*. Günther-Staib Verlag, Biberach/Riss.

- [86] Levy, S. and Carley, J.F. 1989. *Plastics Extrusion Technology Handbook*. Industrial Press Inc., New York.
- [87] Lezak, E., Kulinski, Z., Masirek, R., Piorkowska, E., Pracella, M. and Gadzinowska, K. 2008. Mechanical and Thermal Properties of Green Polylactide Composites with Natural Fillers. *Macromolecular Bioscience*. 8, (2008), 1190–1200.
- [88] Maier, C. and Calafut, T. 1998. *Polypropylene - The Definitive Users Guide and Databook*. Plastics Design Library.
- [89] Manas-Zloczower, I. and Feke, D.L. 2009. Mixing and Compounding of Polymers: Theory and Practice, 2nd Edition. I. Manas-Zloczower, ed. Carl Hanser Verlag GmbH & Company KG. 183–216.
- [90] La Mantia, F.P. and Morreale, M. 2011. Green composites: A brief review. *Composites: Part A*. 42, (2011), 579–588.
- [91] Martin, G.A. 1998. Der Doppelschneckenextruder - Grundlagen und Anwendungsgebiete. VDI, ed. VDI Verlag, Düsseldorf. 3–11.
- [92] Masirek, R., Kulinski, Z., Chionna, D., Piorkowska, E. and Pracella, M. 2007. Composites of Poly(L-lactide) with Hemp Fibers: Morphology and Thermal and Mechanical Properties. *Journal of Applied Polymer Science*. 105, (2007), 255–268.
- [93] Mezger, T.G. 2012. *Das Rheologie Handbuch*. Vincentz Network, Hannover.
- [94] Mitschang, P., Stadtfeld, H., Stoöven, T., Weyrauch, F., Latrille, M. M. Louis, Neitzel, M. and Beresheim, G. 2004. *Handbuch Verbundwerkstoffe - Werkstoffe, Verarbeitung, Anwendung*. M. Neitzel and P. Mitschang, eds. Carl Hanser Verlag GmbH & Company KG. 155–228.
- [95] Mohanty, A.K., Misra, M. and Drzal, L. 2001. Surface modifications of natural fibers and performance of the resulting biocomposites: An overview. *Composite Interfaces*. 8, (2001), 313–343.
- [96] Mohanty, A.K., Misra, M. and Drzal, L.T. 2005. Natural Fibers, Biopolymers, and Biocomposites. A.K. Mohanty, M. Misra, and L.T. Drzal, eds. Taylor & Francis, Boca Raton.
- [97] Monteiro, S.N., Satyanarayana, K.G., Margem, F.M., Silva Ferreira, A. da, Nascimento, D.C.O., Santafe Jr, H.P.G. and Lopes, F.P.D. 2011. Cellulose Fibers: Bio- and Nano-Polymer Composites. S. Kalia, B. Kaith, and I. Kaur, eds. Springer-Verlag, Berlin. 241–262.
- [98] Müssig, J. and Carus, M. 2007. *Marktanalyse Nachwachsende Rohstoffe Teil II; Bio-Polymerwerkstoffe sowie holz- und naturfaserverstärkte Kunststoffe*.
- [99] Müssig, J., Fischer, H., Graupner, N. and Drieling, A. 2010. Industrial Applications of Natural Fibres - Structure, Properties and Technical Applications. J. Müssig, ed. John Wiley & Sons. 269–309.

- [100] Müssig, J. and Sloomaker, T. 2010. Industrial Applications of Natural Fibres - Structure, Properties and Technical Applications. J. Müssig, ed. John Wiley & Sons. 41–48.
- [101] N.N. 2009. *Aktionsplan der Bundesregierung zur stofflichen Nutzung nachwachsender Rohstoffe*.
- [102] N.N. 2013. *IngeoTM Biopolymer 3251D Technical Data Sheet*. NatureWorks LLC.
- [103] N.N. 2013. *Polypropylen BH345MO - Technical Datasheet*. Borealis AG.
- [104] N.N. 2013. *Scona TPPP 8112 FA Merkblatt*. BYK-Chemie GmbH.
- [105] Oberbach, K. and Saechtling, H.J. 2004. *Saechtling-Kunststoff-Taschenbuch*. Carl Hanser Verlag GmbH & Co KG.
- [106] Oever, M.J.A. van den, Beck, B. and Müssig, J. 2010. Agrofibre reinforced poly(lactic acid) composites: Effect of moisture on degradation and mechanical properties. *Composites: Part A*. 41, (2010), 1628–1635.
- [107] Okubo, K., Fujii, T. and Yamashita, N. 2005. Improvement of Interfacial Adhesion in Bamboo Polymer Composite Enhanced with Micro-Fibrillated Cellulose. *JSME International Journal - Series A*. 48, (2005), 199–204.
- [108] Park, S., Venditti, R.A., Jameel, H. and Pawlak, J.J. 2006. Hard to remove water in cellulose fibers characterized by high resolution thermogravimetric analysis - methods development. *Cellulose*. 13, (2006), 23–30.
- [109] Paul, S.H., Joseph, K., Mathew, G., Pothen, L.A. and Thomas, S. 2010. Preparation of polypropylene fiber/banana fiber composites by novel commingling method. *Polymer Composites*. 31, (2010), 816–824.
- [110] Peters, D. 2010. *Nachwachsende Rohstoffe in der Industrie*.
- [111] Pillin, I., Montrelay, N., Bourmaud, A. and Grohens, Y. 2008. Effect of thermo-mechanical cycles on the physico-chemical properties of poly(lactic acid). *Polymer Degradation and Stability*. 93, (2008), 321–328.
- [112] Piotrowski, S. and Carus, M. 2010. Industrial Applications of Natural Fibres - Structure, Properties and Technical Applications. J. Müssig, ed. John Wiley & Sons. 83.
- [113] Poldrack, A.W. Wann ist Peak Oil erreicht? postfossilezukunft.de, Internetquelle, abgerufen am 16.04.2014, 16:18 Uhr, <http://www.postfossile-zukunft.de/node/7>.
- [114] Qiu, W., Zhang, F., Endo, T. and Hirotsu, T. 2005. Effect of maleated polypropylene on the performance of polypropylene/cellulose composite. *Polymer Composites*. 26, 4 (2005), 448–453.
- [115] Radovanovic, I. 2007. *Verarbeitung und Optimierung der Rezeptur von Wood Plastic Composites (WPC)*. Universität Osnabrück.
- [116] Ramzy, A.Y., El-Sabbagh, A.M.M., Steuernagel, L., Ziegmann, G. and Meiners, D. 2014. Rheology of Natural Fibers Thermoplastic Compounds:

- Flow Length and Fiber Distribution. *Journal of Applied Polymer Science*. 131, (2014), 8.
- [117] Reußmann, T. 2003. *Entwicklung eines Verfahrens zur Herstellung von Langfasergranulat mit Naturfaserverstärkung*. Technische Universität Chemnitz.
 - [118] Rosenthal, J. 1992. A Model for Determining Fiber Reinforcement Efficiencies and Fiber Orientation in Polymer Composites. *Polymer Composites*. 13, (1992), 462–466.
 - [119] Rudolf, R. 2007. Der gleichläufige Doppelschneckenextruder - Grundlagen, Technologien, Anwendungen. K. Kohlgrüber, ed. Carl Hanser Verlag, München. 59–93.
 - [120] Saheb, D.N. and Jog, J.P. 1999. Natural Fiber Polymer Composites: A Review. *Advances in Polymer Technology*. 18, No. 4, (1999), 351–363.
 - [121] Sämann, H.-J. 2007. Der gleichläufige Doppelschneckenextruder - Grundlagen, Technologie, Anwendungen. K. Kohlgrüber, ed. Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG. 227–248.
 - [122] Sanchez-Garcia, M.D., Gimenez, E. and Lagaron, J.M. 2008. Morphology and barrier properties of solvent cast composites of thermoplastic biopolymers and purified cellulose fibers. *Carbohydrate Polymers*. 71, (2008), 235–244.
 - [123] Sapieha, S., Pupo, J.F. and Schreiber, H.P. 1989. Thermal Degradation of Cellulose-Containing Composites during Processing. *Journal of Applied Polymer Science*. 37, (1989), 233–240.
 - [124] Satyanarayana, K.G., Monteiro, S.N., Lopes, F., Margem, F.M., Santafe Jr, H. and Costa, L. da 2011. Cellulose Fibers: Bio- and Nano-Polymer Composites. S. Kalia, B.S. Kaith, and I. Kaur, eds. Springer, Heidelberg. 215–240.
 - [125] Scheel, G. 2008. Herstellung und Weiterverarbeitung von naturfaserverstärkten Kunststoffen mit gleichlaufenden Zweischneckenextrudern. 2. *POLYKUM Innovationstag, 15.05.2008, Schlosshotel Schkopau* (2008).
 - [126] Scheel, G. and Darnedde, L. 2011. Energieeffiziente Compoundierung von Biopolymeren. 4. *BioKunststoffe, 12./13. April 2011, Hannover* (2011).
 - [127] Schenek, A. 2006. *Lexikon Garne und Zwirne: Eigenschaften und Herstellung textiler Fäden*. Deutscher Fachverlag, Frankfurt am Main.
 - [128] Schöppner, V. 2013. Verfahrenstechnik der Thermoplastextrusion. A. Limper, ed. Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG. 1–40.
 - [129] Schoßig, M. 2011. *Schädigungsmechanismen in Faserverstärkten Kunststoffen: Quasistatische und dynamische Untersuchungen*. Vieweg und Teubner, Wiesbaden.
 - [130] Schuler, W. 1998. *Der Doppelschneckenextruder - Grundlagen- und Anwendungsgebiete*. VDI Verlag, Düsseldorf.

- [131] Schulze-Kadelbach, R. 1978. *Fließverhalten gefüllter Polymerschmelzen*. Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen.
- [132] Schwarz, O., Ebeling, F.-W. and Furth, B. 2005. *Kunststoffverarbeitung*. Vogel Buchverlag, Würzburg.
- [133] Siebert-Raths, A. 2014. *Modifizierung von Polylactid (PLA) für technische Anwendungen - Verfahrenstechnische Optimierung der Verarbeitungs- und Gebrauchseigenschaften*. Universität Rostock, Agrar- und Umweltwissenschaftliche Fakultät.
- [134] Siebertz, K., Bebbber, D. van and Hochkirchen, T. 2010. *Statistische Versuchsplanung - Design of Experiments (DoE)*. Springer-Verlag, Berlin.
- [135] Sinding, S. 2012. Wachstum der Weltbevölkerung. Berlin-Institut für Bevölkerung und Entwicklung, Internetquelle, abgerufen am 16.04.2014, 16:34 Uhr, <http://www.berlin-institut.org/online-handbuchdemografie/bevoelkerungsdynamik/wachstum-der-weltbevoelkerung.html>.
- [136] Siro, I. and Plackett, D. 2010. Microfibrillated cellulose and new nanocomposite materials: a review. *Cellulose*. 17, (2010), 459–494.
- [137] Sixta, H. 2006. Handbook of Pulp. H. Sixta, ed. Wiley-VCH, Weinheim. 1009–1068.
- [138] Sixta, H., Potthast, A. and Krotschek, W.K. 2006. Handbook of Pulp. H. Sixta, ed. Wiley-VCH, Weinheim. 109–510.
- [139] Sixta, H., Süß, H.-U., Potthast, A., Schwanninger, M. and Krotschek, A.W. 2006. Handbook of Pulp. H. Sixta, ed. Wiley VCH, Weinheim. 609–932.
- [140] Smook, G.A. 2002. *Handbook for Pulp & Paper Technologists*. Angus Wilde Publications, Vancouver.
- [141] Sombatsompop, N. 1999. A Survey of Rheological Properties of Polymer Melts in Capillary Rheometers. *Progress in Rubber and Plastics Technology*. 15, (1999), 47–68.
- [142] Stamm, A.J. 1956. Thermal Degradation of Wood and Cellulose. *Industrial and Engineering Chemistry*. 48, No. 3, (1956), 413–417.
- [143] Stevanovic, C. 2012. *Darstellung der zukünftigen globalen Marktpotenziale von naturfaserverstärkten Kunststoffen (NFK) und Wood-Plastic- Composites (WPC) im Vergleich zum heutigen Stand unter Berücksichtigung relevanter Rahmenbedingungen*. HAWK - Hochschule für angewandte Wissenschaft und Kunst.
- [144] Stitz, S. and Keller, 2004. W. *Spritzgießtechnik. Verarbeitung - Maschine - Peripherie*. Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, München.
- [145] Stokke, D.D., Wu, Q. and Han, G. 2014. *Introduction to Wood and Natural Fiber Composites*. John Wiley & Sons.
- [146] Suddell, B.C. and Evans, W.J. 2005. Natural Fibers, Biopolymers, and Biocomposites. A.K. Mohanty, M. Misra, and L.T. Drzal, eds. Taylor & Francis, Boca Raton. 231–259.

- [147] Taha, I.M.A. 2007. *Processing and characterisation of selected discontinuous natural fibres and their polymer composites*. Technische Universität Clausthal, Fakultät für Natur- und Materialwissenschaften.
- [148] Tasdemir, M., Biltekin, H. and Caneba, G.T. 2009. Preparation and Characterization of LDPE and PP-Wood Fiber Composites. *Journal of Applied Polymer Science*. 112, (2009), 3095–3102.
- [149] Thomas, S., Paul, S.A., Pothan, L.A. and Deepa, B. 2011. Cellulose Fibers: Bio- and Nano-Polymer Composites. S. Kalia, B. Kaith, and I. Kaur, eds. Springer. 11.
- [150] Thwe, M.M. and Liao, K. 2003. Durability of bamboo-glass fiber reinforced polymer matrix hybrid composites. *Composites Science and Technology*. 63, (2003), 375–387.
- [151] Todd, D.B. 2010. Functional Fillers for Plastics. M. Xanthos, ed. Wiley VCH, Weinheim. 43–60.
- [152] Topf, P. 1971. Die thermische Zersetzung von Holz bei Temperaturen bis 180°C - Erste Mitteilung: Stand der Forschung. *Holz als Roh- und Werkstoff*. 7, (1971), 269–275.
- [153] VDI-Wissensforum 2011. *Aufbereitungstechnik 2011: Fit für die Zukunft - Prozessoptimierung in der Aufbereitungstechnik*. VDI Verlag, Düsseldorf.
- [154] Wappis, J. and Jung, B. 2013. *Null-Fehler-Management*. Carl Hanser Verlag GmbH & Co KG.
- [155] Wember, T. 2006. *Technische Statistik und statistische Versuchsplanung*. Eigenverl. des Autors, Datteln.
- [156] White, J.L. 2001. Polymer Mixing - Technology and Engineering. J.L. White, A.Y. Coran, and A. Moet, eds. Hanser Publishers, Munich. 119–161.
- [157] Wiedmann, W. 2007. Der gleichläufige Doppelschneckenextruder - Grundlagen, Technologien, Anwendungen. K. Kohlgrüber, ed. Carl Hanser Verlag, München. 271–298.
- [158] Wildi, R.H. and Maier, C. 1998. *Understanding Compounding*. Hanser Publishers, Munich.
- [159] Witten, E. 2010. *Handbuch Faserverbundkunststoffe - Grundlagen, Verarbeitung, Anwendungen*. Vieweg und Teubner, Wiesbaden.
- [160] Xanthos, M. 2010. Functional Fillers for Plastics. M. Xanthos, ed. Wiley VCH, Weinheim. 19–42.
- [161] 2014. Baumwolle monatlicher Preis - Euro pro Pfund. Indexmundi.com, Internetquelle, abgerufen am 04.01.2014, 21:32 Uhr, <http://www.indexmundi.com/de/rohstoffpreise/?ware=baumwolle&monate=180&wahrung=eur>.
- [162] 2011. Der Baumwollpreis hat sich vervierfacht. Faz.net, Internetquelle, abgerufen am 04.01.2014, 21:46 Uhr, <http://www.faz.net/aktuell/finanzen/devisen-rohstoffe/rohstoffe-der-baumwollpreis-hat-sich-vervierfacht-1120270.html>.

- [163] *DIN 60001-1: Textile Faserstoffe; Teil 1: Naturfasern und Kurzzeichen.* Deutsches Institut für Normung e.V.
- [164] 2014. Ingeo 3251D | PLA | NatureWorks LLC. M-Base Engineering+Software GmbH, Internetquelle, abgerufen am 02.03.2014, 15:05 Uhr, <http://biopolymer.materialdatacenter.com/standard/main/ds/0>.
- [165] 1996. *T231 cm-96: Zero-span breaking strength of pulp (dry zero-span tensile).* TAPPI.

A Anhang

A.1 Screening-Versuchsplan PP-Cellulosefaser

Nr.	Schnecke	Feuchte	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Drehzahl [1/min]	Vakuum	ARE	Durchsatz PP [kg/h]	Durchsatz HVM [kg/h]	Gesamt- Durchsatz [kg/h]	Durchsatz P350 [kg/h] tro- cken	Durchsatz P350 [kg/h] feucht	Durchsatz P350 [%] trocken	Durchsatz P350 [%] feucht	Faser- feuchte [%]
1	KB	feucht	0,12	0,15	100	nein	ja	11,64	0,36	15,00	3,00	3,33	20	22,20	10
2	KB	feucht	0,05	0,0625	520	ja	nein	25,22	0,78	32,50	6,50	7,22	20	22,20	10
3	KB	feucht	0,05	0,0625	100	nein	nein	4,85	0,15	6,25	1,25	1,39	20	22,20	10
4	KB	feucht	0,12	0,15	100	ja	nein	11,64	0,36	15,00	3,00	3,33	20	22,20	10
5	KB	feucht	0,05	0,0625	520	nein	ja	25,22	0,78	32,50	6,50	7,22	20	22,20	10
6	KB	feucht	0,05	0,0625	100	ja	ja	4,85	0,15	6,25	1,25	1,39	20	22,20	10
7	KB	feucht	0,12	0,15	520	ja	ja	60,528	1,872	78,00	15,60	17,32	20	22,20	10
8	KB	feucht	0,12	0,15	520	nein	nein	60,528	1,872	78,00	15,60	17,32	20	22,20	10
9	KB	feucht	0,12	0,15	520	ja	ja	60,528	1,872	78,00	15,60	17,32	20	22,20	10
10	KB	trocken	0,12	0,15	520	ja	nein	60,528	1,872	78,00	15,60	15,62	20	20,02	0,1
11	KB	trocken	0,05	0,0625	100	nein	ja	4,85	0,15	6,25	1,25	1,25	20	20,02	0,1
12	KB	trocken	0,12	0,15	520	nein	ja	60,528	1,872	78,00	15,60	15,62	20	20,02	0,1
13	KB	trocken	0,12	0,15	100	nein	nein	11,64	0,36	15,00	3,00	3,00	20	20,02	0,1
14	KB	trocken	0,12	0,15	100	ja	ja	11,64	0,36	15,00	3,00	3,00	20	20,02	0,1
15	KB	trocken	0,05	0,0625	100	ja	nein	4,85	0,15	6,25	1,25	1,25	20	20,02	0,1
16	KB	trocken	0,05	0,0625	520	nein	nein	25,22	0,78	32,50	6,50	6,51	20	20,02	0,1
17	KB	trocken	0,05	0,0625	520	ja	ja	25,22	0,78	32,50	6,50	6,51	20	20,02	0,1

Nr.	Schnecke	Feuchte	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Drehzahl [1/min]	Vakuum	ARE	Durchsatz PP [kg/h]	Durchsatz HVM [kg/h]	Gesamt- Durchsatz [kg/h]	Durchsatz P350 [kg/h] tro- cken	Durchsatz P350 [kg/h] feucht	Durchsatz P350 [%] trocken	Durchsatz P350 [%] feucht	Faser- feuchte [%]
18	KB	trocken	0,12	0,15	520	ja	nein	60,528	1,872	78,00	15,60	15,62	20	20,02	0,1
19	KB-MPE	trocken	0,05	0,0625	100	nein	nein	4,85	0,15	6,25	1,25	1,25	20	20,02	0,1
20	KB-MPE	trocken	0,05	0,0625	520	ja	nein	25,22	0,78	32,50	6,50	6,51	20	20,02	0,1
21	KB-MPE	trocken	0,12	0,15	520	nein	nein	60,528	1,872	78,00	15,60	15,62	20	20,02	0,1
22	KB-MPE	trocken	0,12	0,15	100	nein	ja	11,64	0,36	15,00	3,00	3,00	20	20,02	0,1
23	KB-MPE	trocken	0,05	0,0625	100	ja	ja	4,85	0,15	6,25	1,25	1,25	20	20,02	0,1
24	KB-MPE	trocken	0,12	0,15	100	ja	nein	11,64	0,36	15,00	3,00	3,00	20	20,02	0,1
25	KB-MPE	trocken	0,12	0,15	520	ja	ja	60,528	1,872	78,00	15,60	15,62	20	20,02	0,1
26	KB-MPE	trocken	0,05	0,0625	520	nein	ja	25,22	0,78	32,50	6,50	6,51	20	20,02	0,1
27	KB-MPE	feucht	0,12	0,15	520	nein	ja	60,528	1,872	78,00	15,60	17,32	20	22,20	10
28	KB-MPE	feucht	0,05	0,0625	100	nein	ja	4,85	0,15	6,25	1,25	1,39	20	22,20	10
29	KB-MPE	feucht	0,12	0,15	520	ja	nein	60,528	1,872	78,00	15,60	17,32	20	22,20	10
30	KB-MPE	feucht	0,12	0,15	100	nein	nein	11,64	0,36	15,00	3,00	3,33	20	22,20	10
31	KB-MPE	feucht	0,12	0,15	100	ja	ja	11,64	0,36	15,00	3,00	3,33	20	22,20	10
32	KB-MPE	feucht	0,05	0,0625	100	ja	nein	4,85	0,15	6,25	1,25	1,39	20	22,20	10
33	KB-MPE	feucht	0,05	0,0625	520	nein	nein	25,22	0,78	32,50	6,50	7,22	20	22,20	10
34	KB-MPE	feucht	0,05	0,0625	520	ja	ja	25,22	0,78	32,50	6,50	7,22	20	22,20	10

A.2 Screening-Versuchsplan PLA-Cellulosefaser

Nr.	Schnecke	Feuchte	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Drehzahl [1/min]	Vakuum	ARE	Durchsatz PLA [kg/h]	Gesamt-Durchsatz [kg/h]	Durchsatz P350 [kg/h] trocken	Durchsatz P350 [kg/h] feucht	Durchsatz P350 [%] trocken	Durchsatz P350 [%] feucht	Faserfeuchte [%]
1	KB	trocken	0,05	0,0667	500	nein	nein	25	33,33	8,33	8,34	25	25,03	0,1
2	KB	trocken	0,05	0,0667	200	ja	nein	10	13,33	3,33	3,34	25	25,03	0,1
3	KB	trocken	0,05	0,0667	200	nein	ja	10	13,33	3,33	3,34	25	25,03	0,1
4	KB	trocken	0,2	0,2667	200	ja	ja	40	53,33	13,33	13,35	25	25,03	0,1
5	KB	trocken	0,2	0,2667	500	ja	nein	100	133,33	33,33	33,37	25	25,03	0,1
6	KB	trocken	0,05	0,0667	500	ja	ja	25	33,33	8,33	8,34	25	25,03	0,1
7	KB	trocken	0,2	0,2667	200	nein	nein	40	53,33	13,33	13,35	25	25,03	0,1
8	KB	trocken	0,2	0,2667	500	nein	ja	100	133,33	33,33	33,37	25	25,03	0,1
9	KB	feucht	0,2	0,2667	200	nein	ja	40	53,33	13,33	14,80	25	27,75	10
10	KB	feucht	0,2	0,2667	500	ja	ja	100	133,33	33,33	37,00	25	27,75	10
11	KB	feucht	0,2	0,2667	500	nein	nein	100	133,33	33,33	37,00	25	27,75	10
12	KB	feucht	0,05	0,0667	500	nein	ja	25	33,33	8,33	9,25	25	27,75	10
13	KB	feucht	0,05	0,0667	200	nein	nein	10	13,33	3,33	3,70	25	27,75	10
14	KB	feucht	0,2	0,2667	200	ja	nein	40	53,33	13,33	14,80	25	27,75	10
15	KB	feucht	0,05	0,0667	200	ja	ja	10	13,33	3,33	3,70	25	27,75	10

Nr.	Schnecke	Feuchte	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Dreh- zahl [1/min]	Vakuum	ARE	Durchsatz PLA [kg/h]	Gesamt- Durchsatz [kg/h]	Durchsatz P350 [kg/h] tro- cken	Durchsatz P350 [kg/h] feucht	Durchsatz P350 [%] trocken	Durchsatz P350 [%] feucht	Faser- feuchte [%]
16	KB	feucht	0,05	0,0667	500	ja	nein	25	33,33	8,33	9,25	25	27,75	10
17	KB-MPE	trocken	0,2	0,2667	500	ja	ja	100	133,33	33,33	33,37	25	25,03	0,1
18	KB-MPE	trocken	0,2	0,2667	200	nein	ja	40	53,33	13,33	13,35	25	25,03	0,1
19	KB-MPE	trocken	0,05	0,0667	500	ja	nein	25	33,33	8,33	8,34	25	25,03	0,1
20	KB-MPE	trocken	0,05	0,0667	200	ja	ja	10	13,33	3,33	3,34	25	25,03	0,1
21	KB-MPE	trocken	0,2	0,2667	200	ja	nein	40	53,33	13,33	13,35	25	25,03	0,1
22	KB-MPE	trocken	0,2	0,2667	500	nein	nein	100	133,33	33,33	33,37	25	25,03	0,1
23	KB-MPE	trocken	0,05	0,0667	200	nein	nein	10	13,33	3,33	3,34	25	25,03	0,1
24	KB-MPE	trocken	0,05	0,0667	500	nein	ja	25	33,33	8,33	8,34	25	25,03	0,1
25	KB-MPE	feucht	0,2	0,2667	500	nein	ja	100	133,33	33,33	37,00	25	27,75	10
26	KB-MPE	feucht	0,05	0,0667	200	ja	nein	10	13,33	3,33	3,70	25	27,75	10
27	KB-MPE	feucht	0,2	0,2667	200	ja	ja	40	53,33	13,33	14,80	25	27,75	10
28	KB-MPE	feucht	0,05	0,0667	500	ja	ja	25	33,33	8,33	9,25	25	27,75	10
29	KB-MPE	feucht	0,2	0,2667	200	nein	nein	40	53,33	13,33	14,80	25	27,75	10
30	KB-MPE	feucht	0,05	0,0667	200	nein	ja	10	13,33	3,33	3,70	25	27,75	10
31	KB-MPE	feucht	0,2	0,2667	500	ja	nein	100	133,33	33,33	37,00	25	27,75	10
32	KB-MPE	feucht	0,05	0,0667	500	nein	nein	25	33,33	8,33	9,25	25	27,75	10

A.3 Box-Behnken-Versuchsplan PP-Cellulosefaser

Nr.	Schnecke	Feuchte Cell.- Fasern [wt.-%]	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Drehzahl [1/min]	Vakuum	ARE	Durchsatz PP [kg/h]	Durchsatz HVM [kg/h]	Gesamt- Durchsatz [kg/h]	Durchsatz P350 [kg/h] tro- cken	Durchsatz P350 [kg/h] feucht	Durchsatz P350 [%] trocken	Durchsatz P350 [%] feucht	Faser- feuchte [%]
1	KB	10	0,12	0,15	200	ja	ja	23,28	0,72	30,00	6,00	6,66	20	22,2	10
2	KB	5	0,1	0,125	200	ja	ja	19,4	0,6	25,00	5,00	5,26	20	21,05	5
3	KB	15	0,1	0,125	500	ja	ja	48,5	1,5	62,50	12,50	14,66	20	23,45	15
4	KB	10	0,08	0,1	200	ja	ja	15,52	0,48	20,00	4,00	4,44	20	22,2	10
5	KB	15	0,12	0,15	350	ja	ja	40,74	1,26	52,50	10,50	12,31	20	23,45	15
6	KB	10	0,08	0,1	500	ja	ja	38,8	1,2	50,00	10,00	11,10	20	22,2	10
7	KB	10	0,12	0,15	500	ja	ja	58,2	1,8	75,00	15,00	16,65	20	22,2	10
8	KB	5	0,08	0,1	350	ja	ja	27,16	0,84	35,00	7,00	7,37	20	21,05	5
9	KB	5	0,12	0,15	350	ja	ja	40,74	1,26	52,50	10,50	11,05	20	21,05	5
10	KB	10	0,1	0,125	350	ja	ja	33,95	1,05	43,75	8,75	9,71	20	22,2	10
11	KB	15	0,08	0,1	350	ja	ja	27,16	0,84	35,00	7,00	8,21	20	23,45	15
12	KB	5	0,1	0,125	500	ja	ja	48,5	1,5	62,50	12,50	13,16	20	21,05	5
13	KB	15	0,1	0,125	200	ja	ja	19,4	0,6	25,00	5,00	5,86	20	23,45	15

A.4 Wirkungsflächen-Versuchsplan PLA-Cellulosefaser

Nr.	Schnecke	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Dreh- zahl [1/min]	Vakuum	ARE	Durch- satz PLA [kg/h]	Gesamt- Durchsatz [kg/h]	Durchsatz P350 [kg/h] trocken	Durchsatz P350 [kg/h] feucht	Durchsatz P350 [%] trocken	Durchsatz P350 [%] feucht	Faser- feuchte [%]
1	KB	0,1	0,1333	200	ja	ja	20	26,67	6,67	7,20	25	27,02	7,5
2	KB	0,1	0,1333	500	ja	ja	50	66,67	16,67	18,01	25	27,02	7,5
3	KB	0,2	0,2667	200	ja	ja	40	53,33	13,33	14,41	25	27,02	7,5
4	KB	0,2	0,2667	350	ja	ja	70	93,33	23,33	25,21	25	27,02	7,5
5	KB	0,15	0,2000	350	ja	ja	52,5	70,00	17,50	18,91	25	27,02	7,5
6	KB	0,2	0,2667	500	ja	ja	100	133,33	33,33	36,02	25	27,02	7,5
7	KB	0,15	0,2000	500	ja	ja	75	100,00	25,00	27,02	25	27,02	7,5
8	KB	0,15	0,2000	200	ja	ja	30	40,00	10,00	10,81	25	27,02	7,5
9	KB	0,1	0,1333	350	ja	ja	35	46,67	11,67	12,61	25	27,02	7,5

A.5 Versuchsplan Einfluss Materialfeuchte PLA-Cellulosefaser

Nr.	Schnecke	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Dreh- zahl [1/min]	Feuchte PLA	Feuchte Fasern	Durch- satz PLA [kg/h]	Gesamt- Durchsatz [kg/h]	Durchsatz P350 [kg/h] trocken	Durchsatz P350 [kg/h] feucht	Durchsatz P350 [%] trocken	Durchsatz P350 [%] feucht	Faser- feuchte [%]
1	KB	0,15	0,2	350	trocken	feucht	52,5	70,00	17,50	19,43	25	27,75	10
2	KB	0,15	0,2	350	trocken	trocken	52,5	70,00	17,50	17,52	25	25,03	0,1
3	KB	0,15	0,2	350	feucht	trocken	52,5	70,00	17,50	17,52	25	25,03	0,1
4	KB	0,15	0,2	350	feucht	feucht	52,5	70,00	17,50	19,43	25	27,75	10

A.6 Versuchsplan Cellulosefasern in PP

Nr.	Schnecke	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Drehzahl 1/min	Durchsatz PP [kg/h]	Durchsatz HVM [kg/h]	Gesamt- Durchsatz [kg/h]	Durchsatz Faser [kg/h] trocken	Durchsatz Faser [kg/h] feucht	Durchsatz Faser [%] trocken	Durchsatz Faser [%] feucht	Faser- feuchte [%]	Fasertyp	Art	Her- kunft	Faser- länge	Aspect Ratio- Ver- teilung
1	KB	0,11	0,1375	300	32,01	0,99	41,25	8,25	9,16	20	22,2	10	P350	Partikel	SW	kurz	eng
2	KB	0,10592	0,13756	125	13,24	0,516	17,20	3,44	3,82	20	22,2	10	FIF 400	Faser	SW	lang	weit
3	KB	0,11	0,1375	300	32,01	0,99	41,25	8,25	9,16	20	22,2	10	FDY 600	Faser	SW	kurz	eng
4	KB	0,11	0,1375	300	32,01	0,99	41,25	8,25	9,16	20	22,2	10	BC200	Faser	HW	kurz	weit
5	KB	0,10592	0,13756	125	13,24	0,516	17,20	3,44	3,82	20	22,2	10	BC1K-Mix	Faser	HW	lang	eng
6	KB	0,11	0,1375	300	32,01	0,99	41,25	8,25	9,16	20	22,2	10	B600	Faser	HW	kurz	eng
7	KB	0,11	0,1375	300	32,01	0,99	41,25	8,25	9,16	20	22,2	10	BE-Mix	Faser	HW	lang	weit
8	KB	0,10592	0,13756	125	13,24	0,516	17,20	3,44	3,82	20	22,2	10	BC1K	Faser	HW	lang	weit

A.7 Versuchsplan Cellulosefasern in PLA

Nr.	Schnecke	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Drehzahl [1/min]	Durchsatz PLA [kg/h]	Ge- samt- Durch- satz [kg/h]	Durchsatz Fasern [kg/h] trocken	Durchsatz Fasern [kg/h] feucht	Durchsatz Fasern [%] trocken	Durch- satz Fa- sers [%] feucht	Faser- feuchte [%]	Fasertyp	Art	Her- kunft	Fa- ser- län- ge	Aspect Ratio- Ver- teilung
1	KB	0,130	0,1734	200	26,00	34,67	8,67	9,62	25	27,750	10	P350	Partikel	SW	kurz	eng
2	KB	0,128	0,1705	88	11,25	15,00	3,75	4,16	25	27,750	10	FIF 400	Faser	SW	lang	weit
3	KB	0,130	0,1734	200	26,00	34,67	8,67	9,62	25	27,750	10	FDY 600	Faser	SW	kurz	eng
4	KB	0,130	0,1734	200	26,00	34,67	8,67	9,62	25	27,750	10	BC200	Faser	HW	kurz	weit
5	KB	0,128	0,1705	88	11,25	15,00	3,75	4,16	25	27,750	10	BC1K-Mix	Faser	HW	lang	eng
6	KB	0,130	0,1734	200	26,00	34,67	8,67	9,62	25	27,750	10	B600	Faser	HW	kurz	eng
7	KB	0,130	0,1734	200	26,00	34,67	8,67	9,62	25	27,750	10	BE-Mix	Faser	HW	lang	weit
8	KB	0,128	0,1705	88	11,25	15,00	3,75	4,16	25	27,750	10	BC1K	Faser	HW	lang	weit

A.8 Faserdispergierungsversuche PP-Cellulosefaser

Nr.	Schnecke	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Drehzahl [1/min]	Durchsatz PLA [kg/h]	Gesamt- Durchsatz [kg/h]	Durchsatz Fasern [kg/h] tro- cken	Durchsatz Fasern [kg/h] feucht	Durchsatz Fasern [%] trocken	Durchsatz Fasern [%] feucht	Faser- feuchte [%]	Fasertyp
1	Disp. 1	0,1275	0,1700	100	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
2	Disp. 1	0,0638	0,0850	200	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
3	Disp. 1	0,0425	0,0567	300	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
4	Disp. 2	0,1275	0,1700	100	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
5	Disp. 2	0,0638	0,0850	200	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
6	Disp. 2	0,0425	0,0567	300	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
7	Disp. 3	0,1275	0,1700	100	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
8	Disp. 3	0,0638	0,0850	200	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
9	Disp. 3	0,0425	0,0567	300	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K

A.9 Faserdispergierungsversuche PLA-Cellulosefaser

Nr.	Schnecke	Füllgrad ASZ [kg*min/h]	Füllgrad gesamt [kg*min/h]	Drehzahl [1/min]	Durchsatz PLA [kg/h]	Gesamt- Durchsatz [kg/h]	Durchsatz Fasern [kg/h] tro- cken	Durchsatz Fasern [kg/h] feucht	Durchsatz Fasern [%] trocken	Durchsatz Fasern [%] feucht	Faser- feuchte [%]	Fasertyp
1	Disp. 1	0,1275	0,1700	100	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
2	Disp. 1	0,0638	0,0850	200	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
3	Disp. 1	0,0425	0,0567	300	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
4	Disp. 2	0,1275	0,1700	100	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
5	Disp. 2	0,0638	0,0850	200	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
6	Disp. 2	0,0425	0,0567	300	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
7	Disp. 3	0,1275	0,1700	100	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
8	Disp. 3	0,0638	0,0850	200	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K
9	Disp. 3	0,0425	0,0567	300	12,75	17,00	4,25	4,57	25	26,8725	7,0	BC1K

A.10 Liste der Publikationen und Vorträge

Publikationen:

- T. Koplin, H.-J. Endres, G. Ziegmann
Influence of the melting zone on compounding of cellulose fiber reinforced polylactide; in: 71st Annual Technical Conference of the Society of Plastics Engineers 2013 (ANTEC 2013), Cincinnati, Ohio, USA 22-24 April 2013, Volume 1 of 3
- T. Koplin, H.-J. Endres, G. Ziegmann
„Characterization of the property-defining Parameters for Compounding of Polypropylene with Cellulose Fibers“; in: 6th International Wood Fibre Polymer Composites Symposium, Proceedings, FCBA Institut Technologique, Biarritz 2013
- H.-J. Endres, T. Koplin, C. Habermann, M. Neudecker „Compounds: Eco-Friendly and Cost-Effective“; in: Kunststoffe international 12/2012, S. 27–31
- H.-J. Endres, T. Koplin, C. Habermann, M. Neudecker „Compounds: Umweltfreundlich und wirtschaftlich“; in: Kunststoffe 12/2012, S. 40–44
- H.-J. Endres, T. Koplin, C. Habermann
“Technology and Nature Combined? – Biocomposites“; in: Kunststoffe International 06/2012, S. 18-21
- H.-J. Endres, T. Koplin, C. Habermann
„Technik und Umwelt vereint? – Bioverbunde“; in: Kunststoffe 06/2012, S. 20-24
- T. Koplin, H.-J. Endres
„Influence of fiber morphology on material properties of NFC“; in: Andrzej K. Bledzki, Volker E. Sperber: Tagungsband 9th WPC, Natural Fibre and other innovative Composites Congress and Exhibition, 19. - 20. Juni 2012, Stuttgart/Fellbach
- P. Helmke, H.-J. Endres, M. Nelles, T. Koplin
“Coloring Cellulose Fiber - Reinforced Polypropylene“; in: Kunststoffe international 4/2012, S. 21-24
- P. Helmke, H.-J. Endres, M. Nelles, T. Koplin
„Einfärben von zelluloseverstärktem Polypropylen“; in: Kunststoffe 4/2012, S. 36-40

Vorträge:

- T. Koplin, H.-J. Endres, G. Ziegmann
„Influence of Moisture of the basic raw materials on the mechanical and rheological properties of Polylactide Cellulose Fiber Composites“
ANTEC 2014, Las Vegas/USA, 28.-30. April 2014
- T. Koplin, H.-J. Endres, O. Cvijanovic
„UPM Formi GP50 – Verarbeitung und Eigenschaften“
3. Tekuma-Fachtagung, Hagen, 14.11.13
- T. Koplin, H.-J. Endres, G. Ziegmann
“Characterization of the property-defining Parameters for Compounding of Polypropylene with Cellulose Fibers“
6th International Wood Fibre Polymer Composites Symposium, Biarritz/Frankreich, 23.-24. September 2013
- T. Koplin, H.-J. Endres, G. Ziegmann
“Identification and Characterization of the significant property-defining Parameters of Natural Fiber Composites“
13th Annual International Polymer Colloquium, Madison/USA, 26. April 2013
- T. Koplin, H.-J. Endres, G. Ziegmann
“Influence of the Melting Zone on Compounding of Cellulose Fiber reinforced Polylactide“
ANTEC 2013, Cincinnati/USA, 22.-24. April 2013
- T. Koplin, H.-J. Endres
“Influence of fiber morphology on material properties of NFC“
9th WPC, Natural Fibre and other innovative Composites Congress, Stuttgart/Fellbach, 19.-20. Juni 2012
- T. Koplin, H.-J. Endres
„Faserverstärkte Kunststoffe für Spritzgieß-Anwendungen“
Arbeitskreis „Naturfasern – Innovative Werkzeugkonzepte“, Stiftung Institut für Werkstofftechnik IWT, Bremen, 22. September 2011